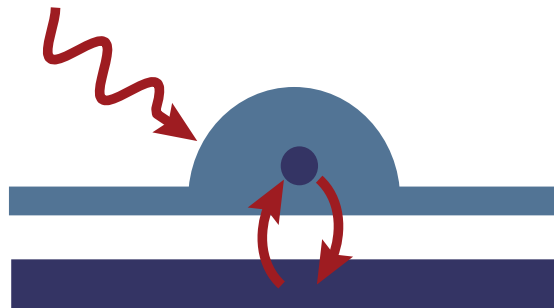


# *Zeitaufgelöste optische Transportspektroskopie an einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkten*



Von der Fakultät für Physik der Universität  
Duisburg-Essen zur Erlangung des  
akademischen Grades eines Doktors der  
Naturwissenschaften genehmigte

- Dissertation -

von

**Annika Kurzmann**  
aus  
**Moers**

Tag der Abgabe: 21.11.2016  
Tag der Disputation: 17.03.2017

Mitglieder der Prüfungskommission:

1. Gutachter: Prof. Dr. Axel Lorke

2. Gutachter: Prof. Dr. Klaus Ensslin

3. Gutachter: Prof. Dr. Jürgen König

Prüfer: Prof. Dr. Hermann Nienhaus

Vorsitzender: Prof. Dr. Klaus Hornberger



*“Achtung! Jetzt gibt es nur zwei Möglichkeiten: Entweder es funktioniert oder es funktioniert nicht.”*

*Lukas, Jim Knopf und Lukas, der Lokomotivführer*



# *Zusammenfassung*

In dieser Arbeit wurde die Ladungsträgerdynamik zwischen einem einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkt und seiner Umgebung mittels zeitaufgelöster resonanter Fluoreszenz untersucht. Es wurden insbesondere vier verschiedenen Prozesse genauer studiert: (i) Das zeitaufgelöste Einzel-Elektronentunneln zwischen einem Quantenpunkt und einem Ladungsträgerreservoir, (ii) die strahlungslose Emission (Auger-Prozess), (iii) der optisch-generierte Einfang von Elektronen und (iv) das Tunneln von resonant angeregten Löchern.

Erstmals konnte das Einzel-Elektronentunneln zwischen einem einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkt und einem Ladungsträgerreservoir beobachtet werden. Als Detektor für den Ladungszustand des Quantenpunkts diente die resonante Fluoreszenzspektroskopie mit einer hohen Zeit- und Ortsauflösung. Es zeigte sich eine starke Rückkopplung der optischen Anregung auf die Tunneldynamik; diese sogenannte "optische Blockade" verringert hierbei die Tunnelrate und eröffnet so die Möglichkeit die Tunneldynamik gezielt mit optischen Pulsen zu manipulieren. Darüber hinaus war es möglich, das Elektronentunneln in Echtzeit zu beobachten und somit die Quantensprünge des Systems in einer Messung des Telegraphenrauschens aufzulösen. Aus dem Telegraphenrauschen wurden mithilfe der vollen Zählstatistik Informationen über das Tunneln zwischen einem Quantenpunkt und einem Ladungsreservoir gewonnen, die in gemittelten Messungen nicht beobachtet werden konnten.

In zeitaufgelösten Messungen der resonanten Fluoreszenz wurde außerdem der Auger-Effekt am negativ geladenen Trion gemessen. Hierbei wird die Rekombinationsenergie des Exzitons strahlungslos auf das zusätzliche Elektron übertragen, welches aus dem Quantenpunkt emittiert wird. In dieser Arbeit konnte gezeigt werden, dass dieser bisher vernachlässigte Effekt im untersuchten System mit einer Rate von  $2\text{ }\mu\text{s}^{-1}$  stattfindet und einen großen Einfluss auf die Emissionseigenschaften des Quantenpunkts hat. Außerdem konnte gezeigt werden, dass durch die resonante, optische Anregung auch freie Elektronen aus dem Rückkontakt erzeugt werden. Diese photogenerierten Elektronen relaxieren in den Quantenpunkt und reduzieren die strahlende Emission des exzitonischen Übergangs.

Abschließend wurde der Einfluss des Lochtunnelns auf die resonante Fluoreszenz des Exzitons untersucht. Die Löcher sammeln sich an einer AlGaAs/GaAs-Grenzfläche, bilden ein Lochgas und verschieben die Resonanz aufgrund des Stark-Effekts. Dieser Tunnelprozess der Löcher führt zu einer Rückkopplungsschleife, die in einem Mitführen der Resonanz und einer Hysterese beobachtet wurde. Die Rückkopplungsschleife kann zur Stabilisierung der resonanten Fluoreszenz des Quantenpunkts benutzt werden, wobei erste zeitaufgelöste Messungen eine Zeitkonstante für den Stabilisierungsprozess in der Größenordnung von 100 ms demonstrieren.



# *Abstract*

In this work the charge-carrier dynamics between a single self-assembled quantum dot and its environment was studied using time-resolved resonance fluorescence. Mainly four effects have been investigated: (i) The time-resolved single electron tunneling between a quantum dot and a charge reservoir, (ii) the non-radiative emission (Auger process), (iii) the optically generated capture of electrons and (iv) the tunneling of resonantly excited holes.

The tunneling of a single electron between a single self-assembled quantum dot and a charge reservoir has been observed for the first time. A resonant optical measurement, the resonance fluorescence spectroscopy, is used to detect the charge state of the quantum dot with high temporal and spatial resolution. A strong influence of the optical excitation on the tunneling dynamics has been measured; this “optical blocking” reduces the tunneling rates into the quantum dot and opens up the possibility for a controlled manipulation of the tunneling dynamics with optical pulses. Furthermore, single electron tunneling has been observed in a real-time measurement, hence, the quantum jumps for electron tunneling have been resolved in a random telegraph noise. The random telegraph noise is evaluated with full counting statistics and includes information about the tunneling process, which cannot be obtained from an averaged tunneling measurement.

An Auger-process of the negatively charged exciton has been observed in the time-resolved resonance fluorescence measurement; a process that has been neglected before. Here, the recombination energy of a electron-hole pair is transferred to the additional electron, which is emitted from the dot. A strong influence of the Auger-effect on the optical properties and an Auger-rate of  $2\text{ }\mu\text{s}^{-1}$  has been observed in the investigated system. Moreover, an optical generation of free electrons excited from the back contact has been measured in the resonant measurement. These photoelectrons relax into the quantum dot and reduce the radiative emission of the excitonic transitions.

Finally, the influence of resonant hole-tunneling on the fluorescence of a single dot embedded in a mesa structure has been investigated. The holes are trapped at an AlGaAs/GaAs-interface, build up a hole gas and shift the quantum dot resonance via the quantum confined Stark-effect. This tunneling-process and the resulting transient hole gas lead to a feedback-loop, which has been observed in a dragging of the resonance and a hysteresis. The feedback loop can be used for a stabilization of the resonance fluorescence signal, with a stabilization time in the order of 100 ms.



# Inhaltsverzeichnis

<b>I</b>	<b>Einleitung und Hintergrund</b>	<b>3</b>
<b>1</b>	<b>Quantenpunkte: Ein erster Einblick</b>	<b>5</b>
<b>2</b>	<b>Optik an Zwei-Niveau-Systemen</b>	<b>9</b>
2.1	Selbstorganisierte Quantenpunkte als Zwei-Niveau-System . . . . .	9
2.1.1	Selbstorganisiertes Wachstum . . . . .	9
2.1.2	Elektronische Bandstruktur . . . . .	10
2.2	Exzitronische Zustände und optische Übergänge . . . . .	12
2.3	Quantenpunkt im elektrischen Feld . . . . .	13
2.3.1	Tunnel- und Relaxationsrate . . . . .	14
2.3.2	Transportspektroskopie . . . . .	15
2.3.3	Optisches Spektrum eines einzelnen Quantenpunktes . . . . .	16
2.4	Differentielle Reflexion . . . . .	17
2.4.1	Feinstrukturaufspaltung des Exzitons . . . . .	18
2.4.2	Tunnelprozesse unter Anwesenheit eines Exzitons . . . . .	19
2.5	Resonante Fluoreszenz an Zwei-Niveau-Systemen . . . . .	21
2.5.1	Licht-Atom-Wechselwirkung . . . . .	21
2.5.2	Rabi-Oszillationen . . . . .	22
2.5.3	Dämpfung . . . . .	22
2.5.4	Sättigung . . . . .	24
2.5.5	Linienbreiten . . . . .	25
2.6	Auger-Rekombination . . . . .	26
<b>3</b>	<b>Optik an einzelnen Quantenpunkten</b>	<b>29</b>
3.1	Probendesign . . . . .	29
3.2	Festkörperimmersionslinse (SIL) . . . . .	31
3.3	Konfokale Mikroskopie . . . . .	31
3.4	Photolumineszenz . . . . .	32
3.5	Resonante Messmethoden . . . . .	33
3.5.1	Differentielle Reflexion . . . . .	33
3.5.2	Resonante Fluoreszenz . . . . .	35
3.5.3	Messung bei unterschiedlichen Laserfrequenzen . . . . .	35
3.5.4	Messung bei unterschiedlichen Laserleistungen . . . . .	36
3.6	Zeitaufgelöste Nichtgleichgewichts-Messung . . . . .	37
3.6.1	Gepulste Gatespannung . . . . .	37

3.6.2	Gepulster Laser . . . . .	38
3.6.3	Hintergrundkorrektur . . . . .	38
<b>II Tunnelndynamiken in resonanter Fluoreszenz</b>		<b>39</b>
<b>4</b>	<b>Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz</b>	<b>41</b>
4.1	Übergangsbereich zwischen Exziton und Trion . . . . .	41
4.2	Messung der Relaxationsrate . . . . .	42
4.3	Tunneln mit Exzitonen . . . . .	44
4.4	Erwartete Relaxationsrate . . . . .	45
4.5	Optische Blockade . . . . .	46
4.6	Optisches Regeln der Relaxationsrate . . . . .	48
4.7	Tunneln eines zweiten Elektrons . . . . .	49
4.7.1	Relaxationsrate mit Auger-Rekombination . . . . .	50
4.8	Tunneln und Auger-Rekombination . . . . .	51
4.9	Zusammengefasste Ergebnisse . . . . .	52
<b>5</b>	<b>Beobachtung einzelner Quantensprünge</b>	<b>55</b>
5.1	Statistische Messung und Quantensprünge . . . . .	55
5.2	Telegraphenrauschen . . . . .	56
5.3	Tunnelraten . . . . .	58
5.4	Optische Zählstatistik . . . . .	60
5.5	Fano-Faktor . . . . .	62
5.6	Kumulanten höherer Ordnung . . . . .	63
5.7	Zusammengefasste Ergebnisse . . . . .	65
<b>III Ladungsträger-Einfang und -Emission unter resonanter Anregung</b>		<b>67</b>
<b>6</b>	<b>Auger-Rekombination in selbstorganisierten Quantenpunkten</b>	<b>69</b>
6.1	Intensitätsänderung durch Auger-Rekombination . . . . .	69
6.2	Messung der Auger-Rate . . . . .	71
6.3	Ratengleichungen zur Auger-Rekombination . . . . .	73
6.4	Auger vs. Tunneln . . . . .	74
6.5	Linienverbreiterung . . . . .	75
6.6	Berechnete Linienbreite . . . . .	76
6.7	Zusammenfassende Ergebnisse . . . . .	77
<b>7</b>	<b>Einfang von Photoelektronen</b>	<b>79</b>
7.1	Beobachtung des Trions . . . . .	79
7.2	Zeitaufgelöste Messung der Einfangrate . . . . .	80
7.3	Entladen des QPs . . . . .	82
7.4	Tunnelrate in den Quantenpunkt . . . . .	83
7.5	Zusammengefasste Ergebnisse . . . . .	84
<b>8</b>	<b>Stabilisierung der resonanten Fluoreszenz durch ein Lochgas</b>	<b>85</b>



8.1	Mesa-Struktur . . . . .	85
8.2	Mitführen der Resonanz . . . . .	86
8.3	Rückkopplungsschleife . . . . .	87
8.4	Ratengleichungen . . . . .	88
8.5	Ein- und Ausschaltzeiten . . . . .	90
8.6	Rückkopplungsschleife an QP-Strukturen ohne AlO <sub>2</sub> - Schicht . . . . .	92
8.6.1	Stabilisierung der exzitonischen Resonanz . . . .	93
8.7	Zusammengefasste Ergebnisse . . . . .	95
<b>9</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>97</b>
9.1	Tunneldynamiken in resonanter Fluoreszenz . . . . .	97
9.2	Ladungsträger-Einfang und -Emission unter resonan- ter Anregung . . . . .	98
9.2.1	Auger-Rekombination und Einfang von Photo- elektronen . . . . .	98
9.2.2	Stabilisierung der resonanten Fluoreszenz durch ein Lochgas . . . . .	98



*Teil I*

*Einleitung und Hintergrund*



# Quantenpunkte: Ein erster Einblick

# 1

Quantenpunkte (QPe) sind Halbleiterstrukturen in denen die Bewegung von Ladungsträgern in allen drei Raumrichtungen eingeschränkt werden kann, sodass sich unter anderem diskrete, quantisierte Energieniveaus bilden.<sup>1</sup> An diesen Halbleiterstrukturen lassen sich fundamentale quantenmechanische Effekte, die sich durch spin- und drehimpulsabhängige Eigenschaften ergeben, an einem elektrisch kontrollierbaren System im Detail untersuchen. Zwei unterschiedliche Arten von Quantenpunkten lassen sich in einer Halbleitermatrix herstellen: (i) lithografisch-definierte Quantenpunkte<sup>2</sup> und (ii) selbstorganisierte Quantenpunkte.<sup>3</sup>

Lithografisch-definierte Quantenpunkte (siehe Abbildung 1.1) besitzen mit ihrer Ausdehnung von einigen 100 nm bis  $\mu\text{m}$  eine im Verhältnis zur Coulomb-Wechselwirkung kleine Quantisierungsenergie, sodass diese elektrostatische Wechselwirkung ihre elektronischen Eigenschaften dominiert. Diese Quantenstrukturen werden in einem "top-down" Verfahren mittels lithografischen Methoden (z. B. Rasterkraftmikroskopie (AFM)<sup>4,5</sup> oder Elektronenstrahlolithographie (EBL)) hergestellt. Über ebenfalls lithografisch definierte Gates lassen sich diese Quantenpunkte einfach elektrisch kontrollieren (siehe Abbildung 1.1).<sup>6</sup> An solchen Systemen wurden bereits Quantensprünge für das Tunneln einzelner Elektronen im Transport beobachtet, welche in einer Echtzeitmessung die maximal mögliche Information über einen Tunnelprozess enthalten.<sup>7,8</sup> In einer Auswertung mittels Zählstatistik kann auf Korrelationen und Wechselwirkungen zwischen den Ladungsträgern in einem eingeschränkten System geschlossen werden.<sup>9</sup>

Eine weitere Art von Quantenpunkten bilden die sogenannten selbstorganisierte Quantenpunkte (siehe Abbildung 1.2), die mittels Molekularstrahlepitaxie hergestellt werden und selbstorganisiert durch Verspannungen im Material entstehen. Aufgrund ihrer viel geringeren Größe im Bereich von wenigen 10 nm bildet sich durch die stärkere Quantisierung eine Schalenstruktur für Elektronen und Löcher,<sup>10</sup> weshalb selbstorganisierte Quantenpunkte auch als "künstliche Atome" bezeichnet werden. Für dieses Quantensystem ermöglichte die elektrische Kontaktierung bereits die Untersuchung von Tunnelprozessen in Ensembles aus vielen Quantenpunkten.<sup>11</sup> Hierfür wird ein zweidimensionales Elektronengas als Detektor und Ladungsreservoir verwendet, wobei die Änderung der Leitfähigkeit des Elektronengases ein direktes Maß für das Elektronentunneln zwischen den Quantenpunkten und einem Ladungsreservoir darstellt.<sup>12</sup>

<sup>1</sup> Warburton, R. J. *et al.*, *Phys. Rev. B* **58** (1998)

<sup>2</sup> Gustavsson, S. *et al.*, *Surf. Sci. Rep.* **64** (2009)

<sup>3</sup> Petroff, P. M. *et al.*, *Phys. Today* **54** (2001)

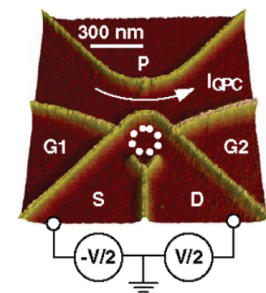


Abbildung 1.1: Rasterkraftmikroskop-Bild eines lithografisch definierten QPs (Gustavsson *et al.*, 2006b).

<sup>4</sup> Held, R. *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **71** (1997)

<sup>5</sup> Lüscher, S. *et al.*, *Microel. J.* **33** (2002)

<sup>6</sup> Hanson, R. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **94** (2005)

<sup>7</sup> Elzerman, J. M. *et al.*, *Nature* **430** (2004)

<sup>8</sup> Gustavsson, S. *et al.*, *Physica E* **40** (2007)

<sup>9</sup> Weis, J. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **71** (1993)

<sup>10</sup> Warburton, R. J. *et al.*, *Phys. Rev. B* **58** (1998)

<sup>11</sup> Marquardt, B. *et al.*, *Nat. Commun.* **2** (2011)

<sup>12</sup> Geller, M. *et al.*, *Nanoscale Res. Lett.* **5** (2010)

<sup>13</sup> Warburton, R. J. *et al.*, *Nature* **405** (2000)

<sup>14</sup> Karrai, K. *et al.*, *Superlattices Microstruct.* **33** (2003)

<sup>15</sup> Müller, A. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **99** (2007)

<sup>16</sup> Press, D. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **98** (2007)

<sup>17</sup> Kuhn, A. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **89** (2002)

<sup>18</sup> Zwiller, V. *et al.*, *New J. Phys.* **6** (2004)

<sup>19</sup> Matthiesen, C. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **108** (2012)

<sup>20</sup> Matthiesen, C. *et al.*, *Nat. Commun.* **4** (2013)

<sup>21</sup> Santori, C. *et al.*, *Nature* **419** (2002)

<sup>22</sup> Schulte, C. H. H. *et al.*, *Nature* **525** (2015)

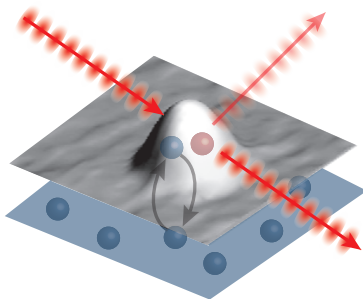


Abbildung 1.2: Optik und Transport an einem selbstorganisierten Quantenpunkt.

Mit dieser Messmethode wurden Nichtgleichgewichtszustände präpariert und deren Relaxation ins Gleichgewicht zeitaufgelöst gemessen. An einem Ensemble aus Quantenpunkten können Einzelelektronentunneln, sowie Quantensprünge für das Elektronentunneln nicht beobachtet werden. Entsprechend war es bisher nicht möglich Korrelationen und Wechselwirkungen im Transport von künstlichen Atomen mit einer ausgeprägten Schalenstruktur zu untersuchen. Einzelne selbstorganisierte QPe wurden jedoch bereits ausgiebig mit optischen Spektroskopiemethoden, wie  $\mu$ -Photolumineszenz,<sup>13</sup> differentieller Transmission<sup>14</sup> oder resonanter Fluoreszenz<sup>15</sup> erforscht. Insbesondere die in den letzten Jahren etablierte resonante Fluoreszenz an QPen ermöglicht es, einzelne Photonen mit hoher spektraler Auflösung zu detektieren und erstmals eine Reihe quantenoptische Effekte in einem festkörperbasierten Quantensystem zu studieren: Photonen antibunching<sup>16</sup>, Einzelphotonenemission<sup>17,18,19</sup>, Ununterscheidbarkeit<sup>20,21</sup> der Photonen, Photonen-Squeezing<sup>22</sup> und Rabi-Oszillationen wurden an Quantenpunkten demonstriert, ideale Voraussetzungen für diese Quantensysteme auch als mögliche Grundbausteine für die optische Quanteninformationsverarbeitung zu dienen.

In dieser Arbeit wird die resonante Fluoreszenz verwendet, um die Ladungsträgerdynamiken in einem einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkt mittels einer optischen Messmethode zu untersuchen. Somit stellt die Messung eine Verbindung aus Transport und Optik da und ermöglicht es erstmals das Tunneln in einen einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkt zu beobachten und den Einfluss der optischen Anregung auf die Transporteigenschaften zu studieren. Insbesondere wurden auch die Quantensprünge für das Elektronentunneln zwischen einem Quantenpunkt und einem Reservoir gemessen, statistisch ausgewertet und der Einfluss einer schwachen Tunnelkopplung auf die optischen Eigenschaften eines einzelnen QPs untersucht.

### Kurzer Überblick

Diese Arbeit ist in drei Teile gegliedert: Im ersten Teil "Einleitung und Hintergrund" werden die wichtigen Grundlagen zu Quantenpunkten erklärt und das im Rahmen dieser Arbeit aufgebaute konfokale Mikroskop vorgestellt. Es ermöglicht die Messung der  $\mu$ -Photolumineszenz, der differentiellen Reflexion und der resonanten Fluoreszenz an einzelnen selbstorganisierten QPen.

Im zweiten und dritten Teil wurde die resonante Fluoreszenz benutzt, um die Ladungsträgerdynamik in einen einzelnen selbstorganisierten QP und in seiner Umgebung zu untersuchen. Der zweite Teil beschäftigt sich vor allem mit Tunnelprozessen zwischen einem einzelnen QP und einem Ladungsträgerreservoir und zeigt, dass das Tunneln eines einzelnen Elektrons in einen einzelnen selbstorganisierten QP gemessen werden kann.

Im dritten Teil werden die Auger-Rekombination und der Einfang

von Photoelektronen aus dem Rückkontakt in einen selbstorganisierten QP untersucht. Außerdem wird eine Rückkopplungsschleife gezeigt, die durch das Tunneln der resonant im QP angeregten Exzitonen erzeugt wird und zur Stabilisierung der resonanten Fluoreszenz dienen kann.





# Optik an Zwei-Niveau-Systemen

2

In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen dieser Arbeit erläutert. Zunächst werden das Wachstum von selbstorganisierten Quantenpunkten (QPen) und die Schalenstruktur der Energieniveaus in diesen QPen beschrieben und außerdem wird auf den Einfluss eines elektrischen Feldes auf die Probenstruktur und den QP in Transportmessungen und optischen Messungen eingegangen. Die grundlegenden physikalischen Prinzipien der verwendeten optischen Messungen ( $\mu$ -Photolumineszenz, differentielle Reflexion/Transmission und resonante Fluoreszenz) werden erläutert und abschließend auf die Wechselwirkungsmechanismen zwischen dem Lichtfeld und den untersuchten Quantenpunkten als Zwei-Niveau-System eingegangen.

## 2.1 Selbstorganisierte Quantenpunkte als Zwei-Niveau-System

Quantenpunkte sind Halbleiterstrukturen, bei denen die Bewegung der Ladungsträger in alle drei Raumrichtungen eingeschränkt ist, wodurch sich diskrete Energieniveaus bilden. Sie sind für die Quantenoptik von besonderem Interesse, da sich durch den Quanteneinschluss ein starkes Dipolmoment<sup>1</sup> bildet, welches wiederum zu einer starken Licht-Materie-Wechselwirkung führt.

### 2.1.1 Selbstorganisiertes Wachstum

Selbstorganisierte QPe<sup>2</sup> (Abbildung 2.1) können mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE)<sup>3</sup> oder metallorganischer Gasphasenepitaxie (MOCVD) gewachsen werden. Eine der beliebtesten Materialkombinationen für die Herstellung von QPen in der Forschung ist Indiumarsenid (InAs) und Galliumarsenid (GaAs). Die Gitterkonstanten von InAs und GaAs unterscheiden sich um etwa 7 Prozent, sodass 1 – 2 Monolagen InAs als Schicht auf GaAs wachsen,<sup>4</sup> diese Schicht wird als Benetzungsschicht<sup>5</sup> bezeichnet (blaue Schicht in Abbildung 2.2(a)). Nachdem eine kritische Schichtdicke erreicht ist, werden die Gitterverspannungen durch Inselwachstum abgebaut, es bilden sich die QPe, siehe Abbildung 2.2(b). Dieses charakteristische Wachstum als Kombination aus Lagen- und Inselwachstum nennt man Stranski-Krastanow-Wachstum.<sup>6</sup> Ein Rastertunnelmikroskopbild (STM)<sup>7</sup> eines einzelnen selbstorganisierten QPs ist in Abbil-

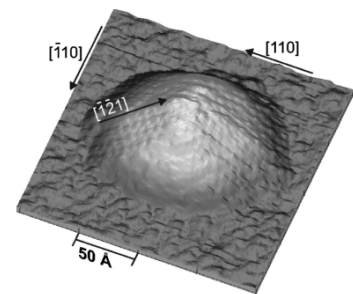


Abbildung 2.1: Rastertunnelmikroskop (STM)-Bild eines InAs-Quantenpunktes mit einem Durchmesser von etwa 10 nm (Márquez *et al.*, 2001).

<sup>1</sup> Warburton, R. J. *et al.*, *Phys. Rev. B* **65** (2002)

<sup>2</sup> Bimberg, D. *et al.* (Wiley, 1998)

<sup>3</sup> Joyce, B. A., *Rep. Prog. Phys.* **48** (1985)

<sup>4</sup> Moison, J. *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **64** (1994)

<sup>5</sup> Englisch: Wetting layer

<sup>6</sup> Baskaran, A. *et al.*, *J. Appl. Phys.* **111** (2012)

<sup>7</sup> Englisch: Scanning tunneling microscope

<sup>8</sup> Moison, J. et al., *Appl. Phys. Lett.* **64** (1994)

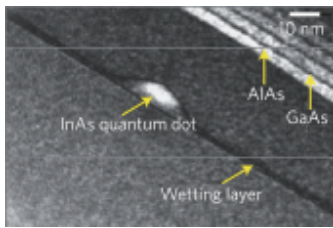


Abbildung 2.3: Transmissionselektronenmikroskop (TEM)-Bild eines selbstorganisierten QPs mit Benetzungsschicht in einer GaAs Matrix. Außerdem ist ein Übergitter aus AlAs und GaAs zu sehen (Warburton, 2013).

<sup>9</sup> Kittel, C. (Oldenbourg, 2002)

<sup>10</sup> Bimberg, D. (Springer, 2008)

<sup>11</sup> Hawrylak, P. et al., *Semicond. Sci. Technol.* **11** (1996)

<sup>12</sup> Stier, O. et al., *Phys. Rev. B* **59** (1999)

<sup>13</sup> Warburton, R. J. et al., *Phys. Rev. B* **58** (1998)

dung 2.1 zu sehen. Die Größe der Inseln und die kritische Schichtdicke ist von den chemischen und physikalischen Eigenschaften, wie Oberflächenenergie und Gitterkonstante, des Substrates und des Films abhängig. InAs-QPe haben je nach Wachstumsbedingungen einen Durchmesser von etwa 20 nm und eine Höhe von 3 bis 5 nm.<sup>8</sup> In Abbildung 2.3 ist ein QP mit Benetzungsschicht in einer Heterostruktur gezeigt. Zur gezielten elektrischen Kontrolle des Beladungszustandes und des elektrischen Feldes am QP, werden QPe häufig in eine solche Heterostruktur eingebettet.

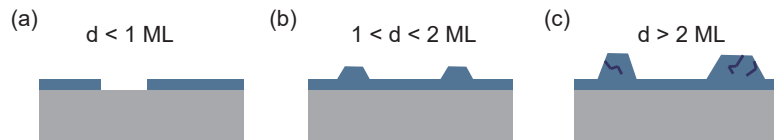


Abbildung 2.2: Stranski-Krastanow-Wachstum von selbstorganisierten QPen. Die graue Schicht ist das GaAs Substrat, auf das InAs (blau) aufgewachsen wird. (a) Für Schichtdicken kleiner als eine Monolage wächst InAs in Schichten auf GaAs auf und eine Benetzungsschicht entsteht. (b) Bei etwa 1 bis 2 Monolagen InAs bilden sich kleine QPe auf dem GaAs Substrat. (c) Ab einer Schichtdicke von 2 Monolagen InAs entstehen Versetzungen im Material.

### 2.1.2 Elektronische Bandstruktur

InAs hat eine kleinere Bandlücke als GaAs (InAs bei 0 K 0.42 eV und GaAs bei 0 K 1.52 eV<sup>9</sup>), wodurch sich im QP Potentialtöpfe für Elektronen im Leitungsband und Löcher im Valenzband bilden. Außerdem führt die räumliche Einschränkung der Ladungsträger im QP zu einer diskreten Zustandsdichte der Elektronen und Löcher. Das Einschlusspotenzial des QPs ist durch die Form und die InAs-Verteilung gegeben, welches sich stark für die Quantenpunkte in Wachstumsrichtung (Höhe) und in der x-y-Ebene (senkrecht zur Wachstumsrichtung) unterscheidet, gezeigt in Abbildung 2.4(a) und (b). In Wachstumsrichtung gibt es einen scharfen Übergang zwischen InAs und GaAs, weshalb das Potenzial hier als Rechteckpotenzial beschrieben werden kann. Die geringe Höhe der QPe von 3 – 5 nm<sup>10</sup> führt zu einer in z-Richtung großen Quantisierungsenergie, sodass bei tiefen Temperaturen hier nur der Grundzustand besetzt wird, siehe Abbildung 2.4(a).

Der QP-Durchmesser ist im Vergleich zu der Höhe der QPe mit 20 nm verhältnismäßig groß. In der adiabatischen Näherung<sup>11</sup> reduziert sich der Quantenpunkt auf ein zweidimensionales System. Das Potenzial kann z. B. durch die 8-Band k·p Theorie<sup>12</sup> auch genau modelliert werden; hier wird es in einem vereinfachten Modell als zweidimensionaler harmonischer Oszillator behandelt.<sup>13</sup>

Im Modell eines zweidimensionalen harmonischen Oszillators bildet sich eine Schalenstruktur für Elektronen im Leitungsband und für Löcher im Valenzband aus, siehe Abbildung 2.4(b). Die energetische Lage der Scheitelpunkte des Parabelpotentials ist durch die Energie des gebundenen Zustands in Wachstumsrichtung gegeben und die Energiewerte können durch Lösen der Schrödingergleichung

bestimmt werden<sup>14</sup>

<sup>14</sup> Fock, V., *Z. Phys.* **47** (1928)

$$E_{n,m} = \hbar\omega(1 + n + m) \quad \text{oder} \quad E_N = \hbar\omega(1 + N) \quad , \quad (2.1)$$

mit  $n, m, N = 0, 1, 2, \dots$ , wobei  $n$  und  $m$  die Quantenzahlen der beiden eindimensionalen harmonischen Oszillatoren sind und  $N = m + n$  ist. Die Zustände werden entsprechend ihrer Drehimpulsquantenzahl  $l$  auch als s-, p- und d-Zustände bezeichnet. Das s-Niveau mit  $N = 0$  und  $l = 0$  ist aufgrund der Spinentartung zweifach entartet. Das p-Niveau mit  $N = 1$  und  $l = \pm 1$  ist vierfach und das d-Niveau sechsfach entartet. Im Valenzband kommt es außerdem durch die Verspannungen im QP zu einer Aufspaltung der Lochzustände in leichte und schwere Löcher, wobei die leichten Löcher energetisch mehrere 10 meV oberhalb der schweren Löcher liegen,<sup>15</sup> weshalb diese häufig vernachlässigt werden.

<sup>15</sup> Adler, F. *et al.*, *J. Appl. Phys.* **80** (1996)

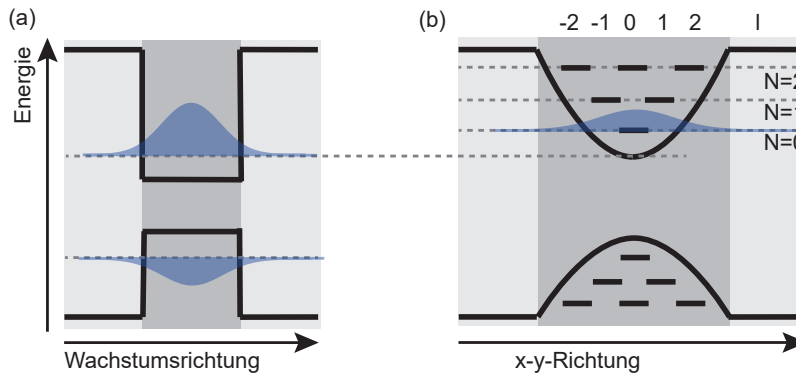


Abbildung 2.4: Bandstruktur eines InAs-QPs in einer GaAs-Matrix mit den unterschiedlichen Energieniveaus. (a) In Wachstumsrichtung kann der QP durch einen rechteckigen Potenzialtopf beschrieben werden und nur das unterste Niveau wird bei tiefen Temperaturen besetzt. (b) In x-y-Richtung kann das QP-Potential durch einen harmonischen Oszillator beschrieben werden. Mehrere Energieniveaus können mit Elektronen oder Löchern besetzt werden.

Im QP eingeschlossene Elektronen und schwere Löcher bilden ein Exziton, welches im QP rekombinieren und ein Photon emittieren kann. Dieses Photon, mit einer typischen Emissionswellenlänge zwischen 1200 und 1300 nm für InAs-QPe in GaAs, wird zur Charakterisierung der QP-Zustände spektroskopiert. In diesem Wellenlängenbereich können Si-Detektoren, die eine hohe Effizienz und ein gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis haben, nicht verwendet werden. Aus diesem Grund wird häufig beim Wachstum der QPe die Emissionswellenlänge derart verschoben, dass sie in den optischen Bereich von Si-Detektoren passen. Hierfür wird ein Ausheizschritt durchgeführt, nachdem die QPe mit einer dünnen GaAs Schicht überwachsen wurden.<sup>16,17</sup> Beim Ausheizen diffundiert Indium aus den QPen in das umgebende GaAs, die Höhe der QPe wird reduziert, welches zu einer Verschiebung der Emissionswellenlänge zu niedrigeren Werten, bis hin zu etwa 950 nm führt.

<sup>16</sup> Garcia, J. M. *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **72** (1998)

<sup>17</sup> Langbein, W. *et al.*, *Phys. Rev. B* **69** (2004)

<sup>18</sup> Marzin, J. Y. et al., *Phys. Rev. Lett.* **73** (1994)

<sup>19</sup> Inoshita, T. et al., *Phys. Rev. B* **46** (1992)

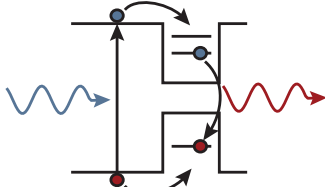


Abbildung 2.5: Photolumineszenz in einem einzelnen QP.

<sup>20</sup> Grundmann, M. et al., *Phys. Rev. Lett.* **74** (1995)

<sup>21</sup> Englisch: "hot"trion

<sup>22</sup> Jovanov, V. et al., *Phys. Rev. B* **84** (2011)

<sup>23</sup> Dekel, E. et al., *Phys. Rev. Lett.* **80** (1998)

## 2.2 Exzitonische Zustände und optische Übergänge

Das optische Spektrum eines einzelnen QPs kann z.B. in einer Photolumineszenzmessung<sup>18</sup> untersucht werden, dabei werden im Matrixmaterial um den QP herum Elektron-Loch-Paare erzeugt, die in die Niveaus des QPs relaxieren und hier rekombinieren (Abbildung 2.5).<sup>19</sup>

Im QP bilden sich durch die optische Anregung unterschiedliche Mehrteilchenzustände (Abbildung 2.6(a)), die unterschiedliche Emissionswellenlängen besitzen und als scharfe Maxima im Emissionsspektrum beobachtet werden (Abbildung 2.6(b)).<sup>20</sup> Der einfachste Mehrteilchenzustand ist das Exziton (X), es besteht aus einem Elektron und einem (schweren) Loch, siehe Abbildung 2.6(a). Zwei Löcher und zwei Elektronen bilden das Biexziton (XX), ein Exziton mit einem zusätzlichen Elektron im Grundzustand das Trion ( $X^-$ ) oder in einem angeregten Zustand das "heiße" Trion ( $X_h^-$ ).<sup>21,22</sup> Rekombiniert ein Elektron-Loch-Paar in einem dieser Komplexe kann Lumineszenz beobachtet werden, deren Photonenenergie für jeden Übergang einen charakteristischen Wert zeigt, siehe Abbildung 2.6.<sup>23</sup> Die unterschiedlichen Rekombinationsenergien können durch die Coulomb-Wechselwirkung erklärt und wie folgt berechnet werden.

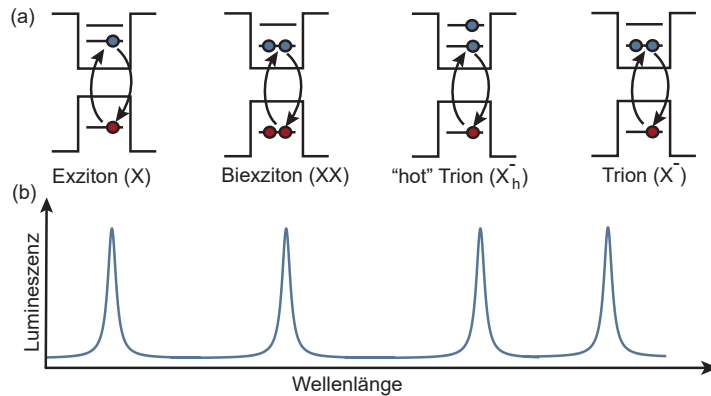


Abbildung 2.6: (a) Mehrteilchenzustände und deren Strahlungsübergänge im QP, die bei der Photolumineszenzmessung beobachtet werden können. (b) Emissionslinien der unterschiedlichen Strahlungsübergänge aus (a) bei den unterschiedlichen Emissionswellenlängen, die aufgrund der Coulomb-Wechselwirkung energetisch verschoben sind.

Die Coulomb-Wechselwirkung zwischen zwei Ladungen  $q_i, q_j$  in einem Quantenpunkt kann mit Hilfe der exakten Diagonalisierung<sup>24</sup> bestimmt werden. Im Einteilchenbild ist sie durch<sup>25</sup>

$$C_{ij} = \iint \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon\epsilon_0} \frac{|\Psi_i(r_i)|^2 |\Psi_j(r_j)|^2}{|r_i - r_j|} dr_i dr_j \quad (2.2)$$

gegeben. Hier sind  $\Psi_i$  und  $\Psi_j$  die Wellenfunktionen der Ladungsträger und  $|r_1 - r_2|$  ist der Abstand zwischen den Ladungsträgern. Die Rekombinationsenergie des Exzitons kann aus der Einteilchenenergien des Elektrons  $E(e)$  und des Lochs  $E(h)$  im Grundzustand und der Coulomb-Wechselwirkung zwischen beiden Ladungsträgern berechnet werden:<sup>26</sup>

<sup>24</sup> Pfannkuche, D. et al., *Phys. Rev. B* **47** (1993)

<sup>25</sup> Warburton, R. J. et al., *Phys. Rev. B* **58** (1998)

<sup>26</sup> Dalgarno, P. A. et al., *Phys. Rev. B* **77** (2008)

$$E(X) = E(e) + E(h) - C_{eh}. \quad (2.3)$$

Fügt man ein weiteres Elektron hinzu und betrachtet das Trion, müssen weitere Coulomb-Terme beachtet werden. Es folgt

$$E(X^-) = 2E(e) + E(h) - 2C_{eh} + C_{ee}, \quad (2.4)$$

wobei hier der Coulomb-Term  $C_{eh}$  anziehend und der Coulomb-Term  $C_{ee}$  abstoßend wirkt. Ob die Emission des Übergangs bei höheren oder niedrigeren Wellenlängen als das Exziton beobachtet wird, hängt nun vom Betrag der beiden Kräfte  $C_{eh}$  und  $C_{ee}$  ab, welcher nach Gleichung 2.2 durch den Überlapp der Wellenfunktionen der Ladungsträger gegeben ist. Der Lochzustand hat in InAs-Quantenpunkten eine größere effektive Masse als das Elektron, weshalb die Elektron-Elektron-Wechselwirkung unterliegt und das Trion bei niedrigeren Energien, d.h. höheren Wellenlängen, beobachtet wird als das Exziton (siehe Abbildung 2.6(b)). Auf diese Art werden auch die Emissionsenergien weiterer Zustände berechnet. Die Verteilung der Wellenlängen sind in Abbildung 2.6 dargestellt, wobei die Emissionslinien des Biexzitons und des "heißen" Trions entsprechend energetisch zwischen dem Exziton und dem Trion liegen.

### 2.3 Quantenpunkt im elektrischen Feld

Elektronen oder Löcher können auch elektrisch in den QP geladen werden, wenn sie in eine Schottky-Diodenstruktur eingebettet sind,<sup>27</sup> wie in Abbildung 2.7 schematisch dargestellt. Die Leitungsbandkante des aktiven Bereichs eines QP-Bauteils besteht hierbei aus einer QP-Schicht, einer Tunnelbarriere und einem Rückkontakt; diese Struktur kann man sich wie einen Kondensator vorstellen, in dem sich QPe befinden. Eine der Platten bildet eine hochdotierte GaAs-Schicht, die bereits beim Probenwachstum hergestellt wird und über eine Tunnelbarriere vom QP getrennt ist. Über die Schichtdicke der AlGaAs/GaAs-Tunnelbarriere kann die Tunnelrate zwischen Rückkontakt und QP eingestellt werden. Die andere Platte des Kondensators wird durch ein metallisches Gate gebildet, welches an der Probenoberfläche einen Schottky-Kontakt erzeugt.

Durch das Anlegen einer Spannung werden die Bänder des Bauteils verkippt, hierbei fällt das elektrische Feld vereinfacht linear zwischen Rückkontakt und Gate ab, sodass das elektrische Feld am QP mit Hilfe des geometrischen Hebelarms bestimmt werden kann. Für die elektrostatische Energie eines Elektrons im QP ergibt sich<sup>28</sup>

$$E_{el} = \frac{e(V_G + V_S)}{\lambda}, \quad (2.5)$$

hier ist  $V_G$  die angelegte Gatespannung,  $V_S$  die Schottky-Spannung<sup>29</sup> und  $\lambda$  der geometrische Hebelarm. Der geometrische Hebelarm wird aus dem Abstand zwischen Gate und Rückkontakt,  $d_G$ , und zwischen Rückkontakt und QP,  $d_{QP}$ , mit  $\lambda = d_G/d_{QP}$  berechnet.<sup>30,31</sup>

Eine Veränderung des elektrischen Feldes am QP führt zu zwei Effekten:

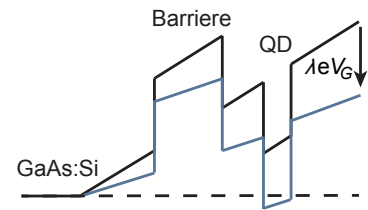


Abbildung 2.7: Leitungsbandkante eines QP-Bauteils, mit Rückkontakt, Tunnelbarriere und QP. Die blau dargestellte Leitungsbandkante zeigt den Verlauf bei einer höheren externen Gatespannung als die schwarze Leitungsbandkante.

<sup>27</sup> Drexler, H. et al., *Phys. Rev. Lett.* **73** (1994)

<sup>28</sup> Medeiros-Ribeiro, G. et al., *Appl. Phys. Lett.* **66** (1995)

<sup>29</sup> Oder: "build-in"-Spannung

<sup>30</sup> Drexler, H. et al., *Phys. Rev. Lett.* **73** (1994)

<sup>31</sup> Beckel, A., Diss. (Universität Duisburg-Essen, 2014)

<sup>32</sup> Englisch: Quantum-confined Stark effect

<sup>33</sup> Li, S.-S. *et al.*, *J. Appl. Phys.* **88** (2000)

<sup>34</sup> Warburton, R. J. *et al.*, *Phys. Rev. B* **65** (2002)

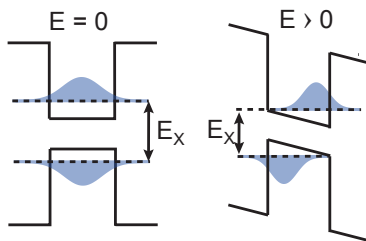


Abbildung 2.8: QP mit der Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Ladungsträger ohne ( $E = 0$ ) und mit externem elektrischem Feld ( $E > 0$ ).

<sup>35</sup> Luyken, R. J. *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **74** (1999)

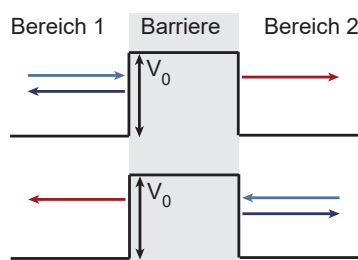


Abbildung 2.9: Ein Elektron trifft auf eine Potenzialbarriere (hellblauer Pfeil) und wird teilweise reflektiert (dunkelblauer Pfeil) und teilweise transmittiert (roter Pfeil). Es kann durch die Barriere tunneln.

<sup>36</sup> Davies, J. H. (Cambridge university press, 1997)

1. Einer Verschiebung der Übergangsenergien der exzitonenischen Zustände und
2. einer Verschiebung der Energieniveaus im QP im Verhältnis zur Fermi-Energie im Rückkontakt und somit zum Beladen der QPe.

Zu 1.: Der Stark-Effekt in QPen<sup>32,33</sup> verursacht eine Verschiebung der Rekombinationsenergien der unterschiedlichen exzitonenischen Übergänge in einem elektrischen Feld. In Abbildung 2.8 ist die Valenzband- und Leitungsbandkante eines QPs mit ( $E > 0$ ) und ohne elektrisches Feld ( $E = 0$ ) dargestellt. Das elektrische Feld verkippt die Bandstruktur und ändert damit die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten des Elektrons und des Lochs, wobei die Energien des Elektronen- und Lochniveaus sinken. Somit nähern sich das Loch und das Elektron energetisch an und die Rekombinationsenergie des Exzitons wird kleiner. Die Rekombinationsenergie des Exzitons im QP ist durch<sup>34</sup>

$$E_X = E_0 - pF + \beta F^2, \quad (2.6)$$

gegeben, mit dem permanenten Dipolmoment  $p$ , der Feldstärke  $F$ , der Energie des ungestörten Exzitons  $E_0$  und der Polarisierung  $\beta$ .

Zu 2.: Die Verschiebung der Energieniveaus des QPs im Verhältnis zur Fermi-Energie im Rückkontakt ist in Abbildung 2.7 dargestellt. Mit angelegter Gatespannung (blaue Leitungsbandkante) wird das Band so verkippt, dass die Energieniveaus im QP in Resonanz mit der Fermi-Energie des Rückkontaktes sind und Elektronen in den QP tunneln können.<sup>35</sup> Zuerst tunnelt ein Elektron in die s-Schale bevor ein weiteres Elektron durch Erhöhen der Gatespannung in den QP geladen wird, wenn die Coulomb-Energie zwischen den beiden Elektronen überwunden werden kann.

### 2.3.1 Tunnel- und Relaxationsrate

Im Folgenden wird der Tunnelprozess durch eine Barriere, wie er beim Tunneln eines Elektrons aus dem Ladungsreservoir in den QP stattfindet, genauer betrachtet. Trifft ein Elektron mit einer Energie  $E$  auf eine Potenzialbarriere der Höhe  $V_0$ , kann man klassisch zwei Fälle unterscheiden. Ist die Energie  $E > V_0$  passiert das Elektron die Barriere. Ist die Energie jedoch kleiner als  $V_0$ , wird das Elektron an der Barriere reflektiert. Betrachtet man das Elektron quantenmechanisch als Welle (hellblauer Pfeil in Abbildung 2.9), wird ein Teil der Welle durch die Barriere transmittiert (roter Pfeil in Abbildung 2.9) und ein Teil der Welle reflektiert (dunkelblauer Pfeil in Abbildung 2.9).<sup>36</sup> Es gibt folglich eine gewisse Wahrscheinlichkeit das Elektron auf der anderen Seite der Barriere in Bereich 2 zu finden, auch wenn gilt  $E < V_0$ . Das Elektron kann auch in die andere Richtung durch die Barriere tunneln (Abbildung 2.9 unten) und entsprechend kann ein Elektron aus dem Ladungsreservoir in den QP oder aus dem QP in das Reservoir tunneln. Die Rate, mit der ein Elektron in den QP tunnelt, wird im Folgenden mit  $\gamma_{In}$  bezeichnet und die Rate, mit der ein Elektron aus dem QP tunnelt, mit  $\gamma_{Out}$ , siehe Abbildung 2.10.



Diese Tunnelraten können nahe und fern des Gleichgewichts untersucht werden. Von einem Tunnelprozess nahe des Gleichgewichts spricht man, wenn das Tunneln z.B. in einem Energiebereich stattfindet, der innerhalb der thermischen Verteilung im Rückkontakt liegt. Durch eine Temperatur  $T \neq 0$  folgt die Verteilung der Elektronen im Rückkontakt einer Fermi-Verteilung und es gibt Energien, bei denen besetzte und unbesetzte Zustände im Rückkontakt vorhanden sind. Elektronen aus dem Rückkontakt können in den QP oder aus dem QP in den Rückkontakt tunneln. Hier ist das System nahe des Gleichgewichts, wie in Abbildung 2.10 dargestellt.

Das Elektronentunneln zwischen QPen und einem Rückkontakt wird häufig auch fern des Gleichgewichts gemessen. Das System aus QP und Rückkontakt kann über die Gatespannung weit aus dem Gleichgewicht gebracht werden, sodass eine Relaxation des Systems ins Gleichgewicht mit der Relaxationsrate  $\gamma_m$  beobachtet wird. Hierfür wird die Gatespannung zunächst so gewählt, dass der QP z.B. unbeladen ist (Abbildung 2.11 links). Die Gatespannung wird dann so geändert, dass ein Niveau im QP in Resonanz mit der Fermi-Energie im Rückkontakt ist. Elektronentunneln zwischen dem QP und dem Reservoir ist bei der Relaxation ins Gleichgewicht möglich (Abbildung 2.11 rechts). Es ergibt sich die Relaxationsrate:

$$\gamma_m = \gamma_{In} + \gamma_{Out}. \quad (2.7)$$

Die Raten  $\gamma_{In}$  und  $\gamma_{Out}$  hängen von der Fermi-Verteilung der Ladungsträger im Rückkontakt, der Entartung der QP-Niveaus und der intrinsischen Tunnelrate  $\Gamma$  ab. Durch die Fermi-Verteilung der Ladungsträger im Rückkontakt gibt es Gatespannungen, bei denen eine der beiden Tunnelraten  $\gamma_{In}$  oder  $\gamma_{Out}$  Null wird und die Relaxationsrate dann der Tunnelrate entspricht.

Ein weiterer wichtiger Parameter zum Beschreiben von Tunnelprozessen ist die sogenannte "intrinsische Tunnelraten"  $\Gamma$ , welche von der Transparenz der Tunnelbarriere  $T$  und einer Frequenz mit der die Elektronen in einem empirischen Modell gegen die Barriere stoßen  $f_a$ <sup>37</sup> abhängt:

$$\Gamma = T f_a. \quad (2.8)$$

Die Transparenz der Barriere kann mit Hilfe der WKB-Näherung<sup>38</sup> berechnet werden und hängt wiederum von der Fläche der durchgetunnelten Barriere ab.

### 2.3.2 Transportspektroskopie

Die Relaxation über Tunnelprozesse in eine Gleichgewichtssituation wurde von Marquardt et al. in einem Ensemble aus QPen bereits in Transportmessungen fern des Gleichgewichts beobachtet.<sup>39,40</sup> Hier wird ein zweidimensionales Elektronengas (2DEG) als Ladungsreservoir und Detektor benutzt, sodass das Tunneln in einer Abnahme der Leitfähigkeit des 2DEGs gemessen werden kann.<sup>41</sup> Bei kurzen Zeiten zeigt die Transportmessung die angeregten Zustände und die Quantisierungsenergien der QPe. In Abbildung 2.12 ist bei einer

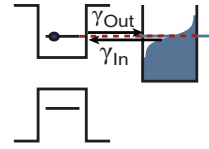


Abbildung 2.10: Tunneln in und aus dem QP mit den Raten  $\gamma_{In}$  und  $\gamma_{Out}$ .

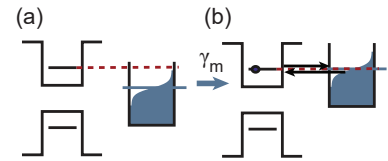


Abbildung 2.11: Messung der Relaxationsrate. (a) Das System QP-Reservoir wird so präpariert, dass es fern des Gleichgewichts ist. (b) Das System relaxiert mit der Relaxationsrate  $\gamma_m$  in eine Situation nahe des Gleichgewichts.

<sup>37</sup> Englisch: Attempt frequency

<sup>38</sup> Nolting, W. (Springer, 2015)

<sup>39</sup> Marquardt, B. et al., *Nat. Commun.* **2** (2011)

<sup>40</sup> Beckel, A. et al., *Phys. Rev. B* **89** (2014)

<sup>41</sup> Geller, M. et al., *Nanoscale Res. Lett.* **5** (2010)

Gatespannung von etwa  $-0.7\text{ V}$  das erste Maximum zu sehen, wenn ein Elektron in das s-Niveau der leeren QPe tunnelt. Im Abstand der Quantisierungsenergie von  $50\text{ meV}$  ist ein weiteres Maximum, bei  $V_G = -0.3\text{ V}$ , erkennbar, wenn ein Elektron in die p-Schale der leeren QPe tunnelt. Im Gleichgewicht, bei  $t = 14\text{ ms}$ , ist das Grundzustandsspektrum der Vielteilchenzustände im QP dargestellt. Die QPe sind mit sechs Elektronen besetzt, zwei in der s-Schale und vier in der p-Schale.

Bei der in Abbildung 2.12 gezeigten Messung tunnelt die Elektronen in Millisekunden in die QPe, was im Vergleich zu übliche Tunnelraten in Proben, die in der Optik verwendet werden, lang ist. Im folgenden Abschnitt wird das optische Spektrum eines einzelnen QPs in Abhängigkeit von der Gatespannung diskutiert.

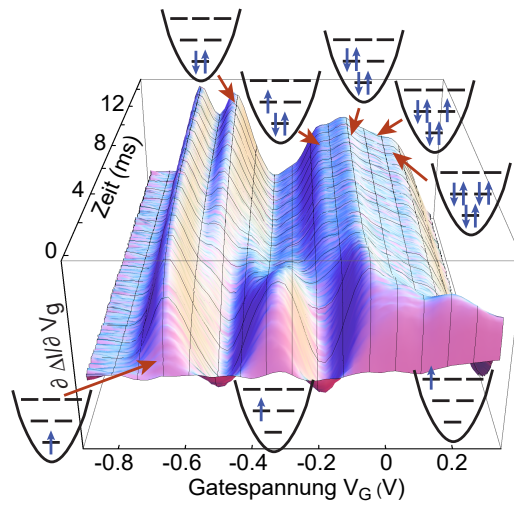


Abbildung 2.12: Beladen eines Ensembles von QPen in einer Transportmessung. Bei  $t = 0$  kann das Einteilchenspektrum der QPe und bei  $t = 14\text{ ms}$  das Vielteilchenspektrum der Grundzustände der QPe beobachtet werden. Das System aus QP und Rückkontakt relaxiert mit der Relaxationsrate in eine Situation nahe dem Gleichgewicht (nach Kurzmann, 2012).

### 2.3.3 Optisches Spektrum eines einzelnen Quantenpunktes

In Abbildung 2.13 sind Photolumineszenzspektren eines einzelnen QPs bei verschiedenen Gatespannungen dargestellt.<sup>42</sup> Es werden die optischen Übergänge der verschiedenen Mehrteilchenzustände untersucht. Bei kleinen Gatespannungen zwischen  $-0.8$  und  $-0.6\text{ V}$  ist der QP unbeladen und das Exziton wird in der Photolumineszenz bei einer Emissionsenergie von etwa  $1.267\text{ eV}$  beobachtet. Bei  $-0.6\text{ V}$  tunnelt ein Elektron in den QP und der Übergang des Trions wird bei einer Energie von  $1.26\text{ eV}$  gemessen. Wie in Kapitel 2.2 erwähnt, liegt die Rekombinationsenergie des trionischen Übergangs etwa  $7\text{ meV}$  unterhalb des exzitonischen Übergangs. Je höher die angelegte Gatespannung wird, desto mehr Elektronen tunnelt in den QP und die entsprechenden Mehrteilchenkomplexe mit ihren optischen Übergängen werden sichtbar. Ab dem dreifach-geladenen Exziton wird mehr als eine Emissionslinie in Abbildung 2.13 gemessen,

<sup>42</sup> Warburton, R. J. et al., *Nature* 405 (2000)



weil es unterschiedliche Endzustände für die Rekombination gibt.<sup>43</sup>

An den einzelnen Emissionslinien kann auch der Stark-Effekt als eine Verschiebung der Emissionsenergien der einzelnen Zustände mit der Gatespannung beobachtet werden. Eine Änderung der Gatespannung um 0.5 V führt z. B. zu einer Änderung der Übergangsenergie des Trions  $X^-$  um 1 meV, sodass sich experimentell eine Stark-Verschiebung von 2 meV/V ergibt.

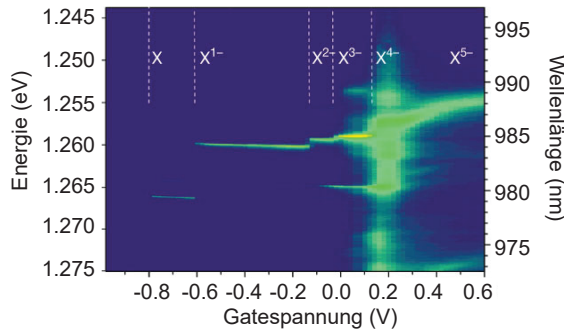


Abbildung 2.13: Photolumineszenzspektrum eines einzelnen QPs bei verschiedenen Gatespannungen. Das Beladen des QPs ist an der sprunghaften Änderung der Emissionsenergie und der Stark-Effekt in der Verschiebung der Emissionsenergien zu sehen (nach Warburton *et al.*, 2000).

## 2.4 Differentielle Reflexion

In der Photolumineszenz-Messung werden viele Ladungsträger in der QP-Umgebung erzeugt, weshalb es nicht immer möglich ist den QP gezielt zu beladen. Außerdem ist die spektrale Auflösung der Emissionslinien durch das Auflösungsvermögen (ca. 50  $\mu\text{eV}$ ) von Spektrometern beschränkt. Eine bessere spektrale Auflösung und weniger freie Ladungsträger in der QP-Umgebung können durch eine resonante Anregung erreicht werden.<sup>44</sup> Die Laserenergie entspricht hierbei der Energie der QP-Resonanz, somit werden nur Ladungsträger im QP generiert (Abbildung 2.14), es ist jedoch schwieriger das QP-Signal vom Laserhintergrund zu trennen. Eine Methode zur resonanten Anregung eines einzelnen QPs ist die differentielle Reflexion (oder Transmission)<sup>45</sup>. Sie ermöglicht mit ihrer resonanten Anregung eine weit höhere Auflösung von nur 0.01  $\mu\text{eV}$ , sodass es erstmals möglich geworden ist, die Resonanzen und Verbreiterungsmechanismen an einem einzelnen Quantenpunkt genau zu untersuchen.

In der differentiellen Reflexion wird die QP-Probe (wie in Abbildung 2.15 dargestellt) mit einem kohärenten Laserfeld beleuchtet. Ein Teil des Laserlichts wird an der Probenoberfläche reflektiert und ein Teil wird transmittiert. Außerdem kann ein weiterer Teil des Laserlichts vom QP absorbiert werden, wenn die Frequenz des Lasers mit der Resonanz des QPs übereinstimmt. Solange der QP nicht in Resonanz mit der Laserenergie ist, ist der reflektierte bzw. transmittierte Anteil des Laserlichts konstant. Sobald der exzitoniche Übergang im QP in Resonanz mit der Energie des Anregungslasers ist, verändert sich das transmittierte und reflektierte Signal, da der QP nun

<sup>43</sup> Ediger, M. *et al.*, *Nat. Phys.* **3** (2007)

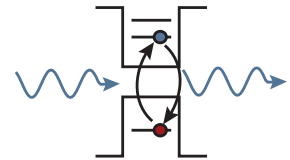


Abbildung 2.14: Resonante optische Anregung. Der exzitoniche Übergang wird mit einer Laserenergie, die der Übergangsenergie des QPs entspricht, angeregt, wodurch keine freien Ladungsträger in der Umgebung des Quantenpunkts erzeugt werden.

<sup>44</sup> Högele, A. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93** (2004)

<sup>45</sup> Karrai, K. *et al.*, *Superlattices Microstruct.* **33** (2003)

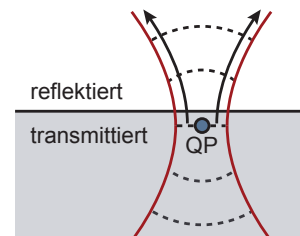


Abbildung 2.15: Selbstorganisierter QP im Feld eines Lasers, mit reflektiertem und transmittiertem Anteil des Lasers.

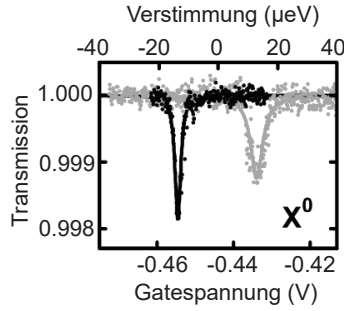


Abbildung 2.16: Differentielle Transmissionsmessung des Exzitons eines selbstorganisierten QPs. Die grauen und die schwarzen Messungen wurden mit unterschiedlichen Polarisierungen des Anregungslasers durchgeführt (nach Högele *et al.*, 2004).

<sup>46</sup> Högele, A. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93** (2004)

<sup>47</sup> Englisch: Bright exciton

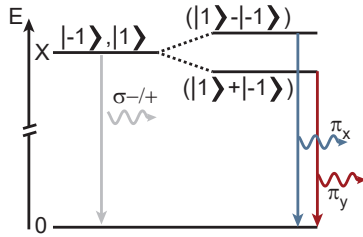


Abbildung 2.17: Energieschema des hellen Exzitonenzustandes. Der Zustand spaltet durch eine Asymmetrie des QPs auf.

<sup>48</sup> Englisch: Dark exciton

<sup>49</sup> Bayer, M. *et al.*, *Phys. Rev. B* **65** (2002)

<sup>50</sup> Högele, A. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93** (2004)

<sup>51</sup> Seguin, R. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **95** (2005)

<sup>52</sup> Stock, E. *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **96** (2010)

<sup>53</sup> Gammon, D. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **76** (1996)

<sup>54</sup> Bester, G. *et al.*, *Phys. Rev. B* **67** (2003)

Photonen absorbiert und wieder emittiert, die mit dem Laserlicht interferieren. Die differentielle Reflexion ist der Quotient aus der Änderung des reflektierenden Signals durch den QP und dem reflektierten Signal ohne QP. Dementsprechend ist die differentielle Transmission der Quotient aus der Änderung der Transmission und dem transmittierten Laserlicht ohne QP. Im Experiment wird der QP über eine gepulste Gatespannung in Resonanz mit der Laserenergie gebracht und zwischen dem Laserhintergrund mit und ohne QP-Signal gewechselt. Ein Lock-in-Verstärker filtert das Signal der differentiellen Reflexion bzw. Transmission aus dem hohen Laserhintergrund heraus.

Eine Messung der differentiellen Transmission an einem exzitonischen Übergang in einem QP ist in Abbildung 2.16 in Abhängigkeit von der Gatespannung gezeigt.<sup>46</sup> Mit der Gatespannung wird die Energie des Übergangs im Verhältnis zur Laserenergie verändert. Die zwei Minima in der Transmission entstehen durch Absorption eines Teils des Laserlichts durch den QP. Sie haben einen Abstand von etwa 30 µV und können durch die Feinstrukturaufspaltung des hellen Exzitons<sup>47</sup> erklärt werden, die im folgenden Abschnitt genauer beschrieben wird.

#### 2.4.1 Feinstrukturaufspaltung des Exzitons

Ein Exziton besteht aus einem Elektron mit Spin  $\pm 1/2$  und einem Loch mit Spin  $\pm 3/2$ . Durch die unterschiedlichen Spins gibt es vier entartete Zustände des Exzitons. Damit bei der Rekombination eines Zustandes ein Photon ausgesandt wird, muss die Änderung des Drehimpuls gerade  $\pm 1$  sein. Beim Exziton entstehen zwei Zustände mit Gesamtdrehimpuls  $J = \pm 2$ , sie emittieren kein Photon und werden deshalb als dunkle Exzitonen<sup>48</sup> bezeichnet. Zwei Zustände haben den Gesamtdrehimpuls  $J = \pm 1$ , sie werden als helle Exzitonen bezeichnet. Durch die Elektron-Loch-Wechselwirkung sind die dunklen und hellen Zustände des Exzitons energetisch voneinander getrennt<sup>49</sup> und auch die beiden hellen Zustände spalten durch die Asymmetrie des QPs energetisch auf. Es entsteht ein nicht entartetes Dublett mit  $|1\rangle \pm |-1\rangle$ . In Abbildung 2.17 ist die Aufspaltung des  $|-1\rangle, |1\rangle$  Zustandes in den  $|1\rangle + |-1\rangle$  Zustand und den  $|1\rangle - |-1\rangle$  Zustand gezeigt. Die Emission des  $|-1\rangle, |1\rangle$  Zustandes ist zirkular polarisiert  $\sigma_{-/+}$ , da es ein reiner Zustand ist, wohingegen die Emission der gemischten Zustände linear polarisiert ist<sup>50</sup> und die Polarisationsrichtungen senkrecht zueinander stehen  $\pi_{x/y}$ . Der energetische Abstand zwischen den beiden hellen Emissionslinien wird als Feinstrukturaufspaltung<sup>51</sup> bezeichnet und beträgt bei InAs-QPen weniger als 40 µV.<sup>52,53</sup> Die Feinstrukturaufspaltung wird von den morphologischen Eigenschaften des QPs, wie Form und Zusammensetzung beeinflusst. Es wird jedoch auch eine Feinstrukturaufspaltung bei runden QPen beobachtet, was durch atomare Asymmetrien des unterliegenden Gitters erklärt werden kann.<sup>54</sup> Da die Feinstrukturaufspaltung klein ist, kann erst in resonanten Messungen zwischen den beiden hellen Linien des exzitonischen Übergangs unter-

schieden werden, ohne die Polarisierung auszunutzen.

### 2.4.2 Tunnelprozesse unter Anwesenheit eines Exzitons

Neben der Feinstrukturaufspaltung können auch andere Effekte, wie der Einfluss eines Elektron-Loch-Paares im QP auf die Tunnelspannung untersucht werden. Die differentielle Reflexion oder Transmission wird hierfür für verschiedene Laserfrequenzen und Gatespannungen gemessen, wodurch die Resonanzen des exzitonischen und trionischen Übergangs aufgelöst werden. Das Verhalten dieser Resonanzen ist in Abbildung 2.18(a) zusammen mit der gatespannungsabhängigen Photolumineszenz gezeigt.<sup>55</sup> Der Übergang vom Exziton zum Trion findet in der Absorptionsmessung bei einer Gatespannung  $V_2$  und in der Photolumineszenzmessung bei einer niedrigeren Gatespannung  $V_1$  statt. Diese unterschiedlichen Gatespannungen können durch den Einfluss eines Elektron-Loch-Paares im QP auf die Tunnelspannung erklärt werden.

<sup>55</sup> Seidl, S. *et al.*, *Phys. Rev. B* **72** (2005)

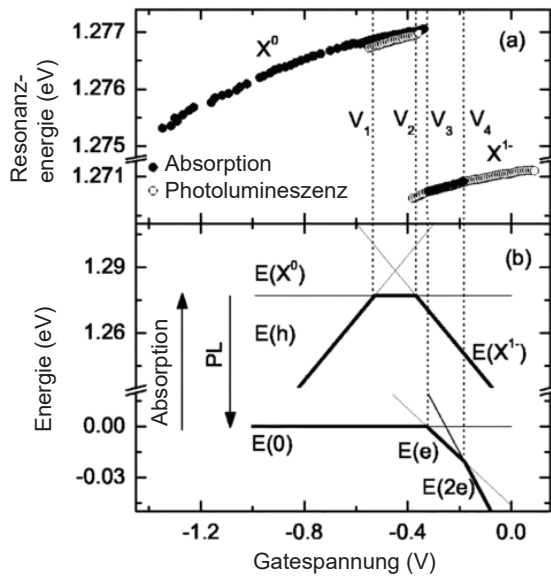


Abbildung 2.18: (a) Absorption und Photolumineszenz des Exzitons und des Trions eines QPs in Abhängigkeit von der Gatespannung. (b) Energien der einzelnen Zustände im QP in Abhängigkeit von der Gatespannung (nach Seidl *et al.*, 2005).

Dieser Einfluss des Elektron-Loch-Paares wird durch die Berechnung der Energien der Mehrteilchenzustände in Abhängigkeit von der Gatespannung mit einem einfachen Modell der Coulomb-Blockade im Folgenden näher betrachtet.<sup>56,57,58</sup> Die Energien der Ladungen im QP sind durch die Coulomb-Wechselwirkung der einzelnen Ladungen und das elektrostatische Potential am QP gegeben, wobei das elektrostatische Potential über die Gatespannung eingestellt und mit  $E_{el}(V_G) = e(V_S + V_G)/\lambda$  berechnet werden kann.  $V_S$  ist hier die Schottky-Spannung und  $\lambda$  der Hebelarm der Probe (vergl. Kapitel 2.3). Die Energie eines Elektrons an der Fermi-Kante des Rückkontaktes wird als 0 festgelegt, d. h. sobald die Energie des einfachbeladenen QPs ( $E(e)$ ) kleiner Null wird ist dieser Zustand energetisch günstiger. Ein Elektron tunnelt in den QP, wenn es die elektrostati-

<sup>56</sup> Seidl, S. *et al.*, *Phys. Rev. B* **72** (2005)

<sup>57</sup> Warburton, R. J. *et al.*, *Phys. Rev. B* **58** (1998)

<sup>58</sup> Dalgarno, P. A. *et al.*, *Phys. Rev. B* **77** (2008)

sche Barriere überwinden kann wodurch es dann die Einschchlussenergie des QPs  $E_C$  gewinnt. Somit ergibt sich für die gatespannungsabhängige Energie des einfach-beladenen QPs (Abbildung 2.18(b)):

$$E(e) = -E_{el}(V_G) - E_C. \quad (2.9)$$

Damit ein zweites Elektron in den QP geladen werden kann, muss zusätzlich die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den beiden Elektronen  $C_{ee}$  überwunden werden:

$$E(2e) = -2E_{el} - 2E_C + C_{ee}. \quad (2.10)$$

Das Hinzufügen eines Lochs führt zu einer negativen Coulomb-Energie mit jedem Elektron im QP. Somit ergibt sich für die Energie des mit einem Exziton besetzten QPs

$$E(X) = E_g - C_{eh} \quad (2.11)$$

mit  $E_g = E(e) + E(h)$  und für die Energie des mit einem Trion besetzten QPs

$$E(X^-) = E_g - E_{el}(V_g) - E_C + C_{ee} - 2C_{eh}. \quad (2.12)$$

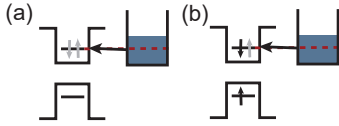


Abbildung 2.19: (a) Bei der Absorptionsmessung findet der Übergang vom Exziton zum Trion statt, wenn ein Elektron in den leeren QP tunneln kann. (b) In der PL-Messungen findet der Übergang statt, wenn ein Elektron in den mit einem Exziton besetzten QP tunneln kann.

Die unterschiedlichen Energien der Zustände werden mit den Rekombinationsenergien des Exzitons (1.277 eV) und Trions (1.271 eV) und den Tunnelspannungen für das Tunneln des ersten und zweiten Elektrons berechnet. In der Absorptionsmessung in Abbildung 2.18(a) wird der Übergang vom Exziton zum Trion bei einer Gatespannung von  $V_3 = -0.32$  V beobachtet, wenn ein Elektron in den leeren QP tunnelt; erst danach kann der trionische Übergang in einer resonanten Messung angeregt werden. Ein zweites Elektron tunnelt bei einer Gatespannung von  $V_4 = 0.2$  V in den QP, sodass der Übergang des Trions nicht mehr detektiert wird. Mit der Gatespannungen  $V_2$  und den Rekombinationsenergien des Exzitons und Trions kann direkt die Einschchlussenergie eines Elektrons in diesem QP zu  $E_C = 134$  meV berechnet werden. Mit Hilfe des Schnittpunkts der Energie des einfach-beladenen QPs mit der Energie des zweifach-beladenen bei  $V_4$  erhält man die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Elektronen  $C_{ee} = 23$  meV, sowie  $C_{eh} = 29$  meV und  $E_g = 1306$  meV.<sup>59</sup> Nun können die unterschiedlichen Energien der Zustände über die Gatespannung aufgetragen werden, wie in Abbildung 2.18 dargestellt. Der Schnittpunkt zwischen der Energie des mit einem Exziton besetzten QPs  $E(X)$  mit der Energie des mit einem Trion besetzten QPs  $E(X^-)$  markiert die Gatespannung  $V_2$ , bei der ein Elektron in den mit einem Exziton besetzten QP tunneln kann, siehe Abbildung 2.19(b).<sup>60</sup> Sie stimmt mit der Gatespannung überein, bei der in der PL-Messung der Übergang vom Exziton zum Trion stattfindet und liegt etwa 46 mV unterhalb der Gatespannung, bei der Elektronentunneln in den leeren QP möglich ist. Hieraus ergibt sich zusammenfassend, dass Elektronentunneln in den mit einem Exziton besetzten QP bei niedrigeren Gatespannungen als das Tunneln in den leeren QP stattfindet.

<sup>59</sup> Seidl, S. et al., *Phys. Rev. B* 72 (2005)

<sup>60</sup> Kloeffel, C. et al., *Phys. Rev. Lett.* 106 (2011)

## 2.5 Resonante Fluoreszenz an Zwei-Niveau-Systemen

Eine weitere resonante Messmethode ist die resonante Fluoreszenz (RF), bei der direkt die vom QP ausgesandten Photonen gemessen werden. Das an der Probenoberfläche reflektierte Laserlicht wird mithilfe von Polarisatoren von den Photonen des QPs getrennt, sodass eine hohe Zeitauflösung erreicht werden kann, die vor allem durch die Zahl der eingesammelten Photonen gegeben ist.

Bei der resonanten Fluoreszenz<sup>61</sup> wird der QP mit kohärentem Licht beleuchtet, dessen Anregungsenergie nahe der Resonanzenergie des Systems liegt. Der QP bildet, mit dem Grundzustand als erstes Niveau  $|1\rangle$  und dem mit einem Exziton besetzten QP als zweites Niveau  $|2\rangle$ , ein Zwei-Niveau-System, dessen Zustände mit einer Energiedifferenz von  $\Delta E = \hbar\omega_0$  voneinander getrennt sind. Im Folgenden wird die Wechselwirkung einer elektromagnetischen Welle mit einem solchen Zwei-Niveau-System genauer beschrieben. Es handelt sich hierbei um ein wichtiges Modellsystem für die Quantenoptik, d.h. der Licht-Materie-Wechselwirkung in der Quantenmechanik.

### 2.5.1 Licht-Atom-Wechselwirkung

Ein Zwei-Niveau-System, das mit einem monochromatischen Lichtfeld mit der Kreisfrequenz  $\omega$  wechselwirkt (Abbildung 2.20), kann mit dem Hamilton-Operator  $\hat{H}$  beschrieben werden. Er setzt sich aus dem Hamilton-Operator des Zwei-Niveau-Systems  $\hat{H}_N$  und dem Wechselwirkungsanteil  $\hat{V}$  zusammen:

$$\hat{H} = \hat{H}_N + \hat{V}. \quad (2.13)$$

Die Zeitentwicklung der Zustände im Zwei-Niveau-System kann mit Hilfe der Schrödingergleichung

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\vec{r}, t) = \hat{H} \Psi(\vec{r}, t) = (\hat{H}_N + \hat{V}) \Psi(\vec{r}, t) \quad (2.14)$$

bestimmt werden. Hier ist  $\hbar$  das Plancksche Wirkungsquantum und  $\Psi(r, t)$  die Wellenfunktionen in Abhängigkeit von der Zeit  $t$  und dem Ort  $r$ , sie ist in erster Ordnung Störungstheorie durch

$$\Psi(\vec{r}, t) = C_1(t)e^{-i\omega_1 t}u_1(\vec{r}) + C_2(t)e^{-i\omega_2 t}u_2(\vec{r}). \quad (2.15)$$

gegeben, wobei  $\omega_1$  und  $\omega_2$  den Energien des ersten und zweiten Niveaus entsprechen. Für die zeitabhängigen Amplituden  $C_1$  und  $C_2$  der ungestörten Eigenzustände  $u_1$  und  $u_2$  ergibt sich nach Einsetzen in die Schrödingergleichung, Umformen und Integrieren<sup>62</sup>

$$\dot{C}_1(t) = -\frac{i}{\hbar}(C_1(t)V_{11} + C_2(t)V_{12}e^{-i\omega_0 t}) \quad \text{und} \quad (2.16)$$

$$\dot{C}_2(t) = -\frac{i}{\hbar}(C_1(t)V_{21}e^{-i\omega_0 t} + C_2(t)V_{22}) \quad (2.17)$$

mit der Resonanzfrequenz des Zwei-Niveau-Systems  $\omega_0$ . Die Verschiebung des atomaren Dipols im elektrischen Feld des Lichts ist gegeben mit

$$\hat{V}(t) = e\vec{r}\vec{E}(t) \quad (2.18)$$

<sup>61</sup> Astafiev, O. et al., *Science* 327 (2010)

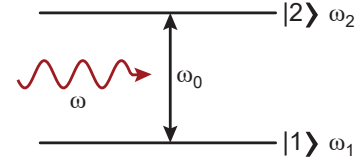


Abbildung 2.20: Wechselwirkung zwischen einem Lichtfeld und einem Zwei-Niveau-System.

<sup>62</sup> Fox, M. (Oxford University Press, 2007)

und

$$V_{ij}(t) = -\frac{E_0}{2}(e^{i\omega t} + e^{-i\omega t})\mu_{ij}, \quad (2.19)$$

$E_0$  entspricht der Amplitude der Lichtwelle. Das Dipolmatrixelement  $\mu_{ij}$  beschreibt die Stärke der Kopplung zwischen dem Zwei-Niveau-System und der Lichtwelle und kann mit

$$\mu_{ij} = -e \int u_i^* x u_j d^3\vec{r} \quad (2.20)$$

berechnet werden. Mit der Rabi-Frequenz

$$\Omega = \mu_{12}E_0/\hbar \quad (2.21)$$

erhält man für Gleichungen 2.16 und 2.17

$$\dot{C}_1(t) = \frac{i}{2}\Omega(e^{i(\omega-\omega_0)t} + e^{-i(\omega+\omega_0)t})C_2(t) \quad \text{und} \quad (2.22)$$

$$\dot{C}_2(t) = \frac{i}{2}\Omega(e^{-i(\omega-\omega_0)t} + e^{i(\omega+\omega_0)t})C_1(t). \quad (2.23)$$

<sup>63</sup> Fox, M. (Oxford University Press, 2007)

Mit der Lösung dieser beiden Gleichungen wird das Verhalten eines Zwei-Niveau-Systems in einem Lichtfeld beschrieben, wobei man zwei Fälle unterscheiden kann: (i) schwache Felder und (ii) starke Felder. In schwachen Feldern kann man annehmen, dass der obere Zustand nicht besetzt wird und damit  $C_1(t) \gg C_2(t)$  und  $C_1(t) \approx 1$  ist. Für schwache Felder wächst die Wahrscheinlichkeit für eine Besetzung des oberen Zustandes mit  $t^2$  an.<sup>63</sup> Im Folgenden wird die Wechselwirkung mit starken Feldern näher beschrieben.

### 2.5.2 Rabi-Oszillationen

<sup>64</sup> Englisch: Rotating wave approximation

Für starke Felder wird die Drehwellennäherung<sup>64</sup> benutzt und zur Vereinfachung nur der Fall  $\Delta\omega = 0$  (keine Verstimmung zwischen Resonanzfrequenz und Laserfrequenz) betrachtet. Als Lösungen von Gleichung 2.22 und 2.23 erhält man dann die Besetzungswahrscheinlichkeiten des oberen und unteren Zustands:

$$|C_1(t)|^2 = \cos^2(\Omega t/2) \quad \text{und} \quad (2.24)$$

$$|C_2(t)|^2 = \sin^2(\Omega t/2). \quad (2.25)$$

Entsprechend oszilliert die Besetzung zwischen dem ersten und zweiten Niveau hin und her. Diese Oszillation wird als Rabi-Oszillation<sup>65</sup> bezeichnet und ist in Abbildung 2.21 dargestellt. Sie entsprechen einer stark nicht-linearen Dynamik, weil die Besetzung des oberen Zustandes nicht mehr linear mit der Leistung zunimmt.

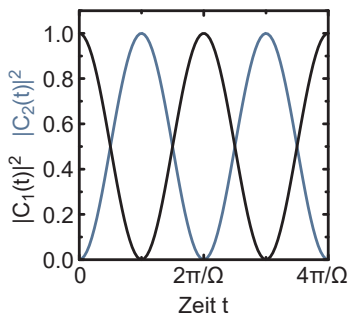


Abbildung 2.21: Die Besetzung des oberen Niveaus  $|C_2|^2$  und des unteren Niveaus  $|C_1|^2$  eines Zwei-Niveau-Systems oszilliert (Rabi-Oszillation) in einem starken Feld.

### 2.5.3 Dämpfung

Die Rabi-Oszillation wird in Messungen durch verschiedene Dämpfungsmechanismen gestört. Außerdem kann sie bei einer kontinuierlichen Anregung nicht beobachtet werden, weil dann die mittlere Besetzung des oberen Zustandes gemessen wird (Messung von Rabi-Oszillationen an QPen<sup>66</sup>). Ein Dämpfungsmechanismus ist die spon-

<sup>66</sup> Zrenner, A. et al., Nature 418 (2002)



tane Emission, sie wird durch die Zeitkonstante  $T_1$  charakterisiert und ihre Rate ist durch die Lebenszeit des oberen Niveaus in einem Zwei-Niveau-System gegeben. Ein weiterer Dämpfungsmechanismus ist die Dephasierung, die durch die Dephasierungszeit  $T_2$  charakterisiert wird, hier gehen z. B. elastische Stöße des Atoms ein, die die Phase der Wellenfunktion stören. Die Dephasierung setzt sich aus zwei Effekten zusammen (i) der Besetzungszustand ( $T_1$ -Zeit) und (ii) den besetzungserhaltenden Streuprozessen (die als reine Dephasierung oder  $T_2^*$ -Zeit bezeichnet werden). Für die Dephasierungszeit ergibt sich:<sup>67</sup>

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*}. \quad (2.26)$$

In QPen ist vor allem die Umgebung des QPs eine Quelle für Dephasierung über eine große Bandbreite. Hier dominieren Ladungs- und Spinfluktuationen die  $T_2^*$ -Zeit. Ladungsfluktuationen führen zu einer Verschiebung der Resonanzenergie des QPs gegenüber der Laserenergie durch den Stark-Effekt, sodass der QP bei einer festen Anregungsfrequenz nicht mehr angeregt und dunkel wird. Die Ladungsfluktuationen sind vor allem bei nicht-resonanten Messungen und in Proben mit einer hohen Defektdichte dominant. Ein weiterer Einfluss auf die  $T_2^*$ -Zeit ist das Spinrauschen, welches durch Fluktuationen im Kernspinbad erzeugt wird.<sup>68,69</sup> Die etwa  $10^5$  Kernspins gleichen sich nicht vollkommen aus, wodurch es zu einer Magnetfeldfluktuation in der Probe kommt, siehe Abbildung 2.22.<sup>70</sup> Die Hyperfeinwechselwirkung zwischen einem Elektronenspin im QP und dem Kernspinbad kann durch ein effektives Feld, das Overhauser-Feld, beschrieben werden.<sup>71</sup>

Ein System mit Dämpfung und spontaner Emission kann nicht durch die Schrödinger-Gleichung beschrieben werden, weil sie nur reine Zustände beschreibt. Das Aussenden eines Photons von einem Zwei-Niveau-System (spontane Emission) kann zu einer statistischen Überlagerung zweier Quantenzustände führen, weshalb im Folgenden die Dichtematrix  $\rho$  eingeführt wird,<sup>72</sup> mit ihr ist es möglich inkohärente Überlagerungszustände zu berechnen. Die diagonalen Elemente der Dichtematrix ( $\rho_{11}$  und  $\rho_{22}$ ) geben die Besetzungswahrscheinlichkeiten der Zustände 1 und 2 an:

$$\rho_{11} = |C_1|^2 \quad \text{und} \quad (2.27)$$

$$\rho_{22} = |C_2|^2. \quad (2.28)$$

Die nicht diagonalen Elemente der Dichtematrix beschreiben die Kohärenz der Zustände:

$$\rho_{12} = C_1 C_2^* \quad \text{und} \quad (2.29)$$

$$\rho_{21} = C_2 C_1^*. \quad (2.30)$$

Der Unterschied zwischen einem statistischen Gemisch und einer kohärenten Superposition sind die nicht diagonalen Elemente in der Dichtematrix. In einem statistischen Gemisch wird jedes Atom  $|C_1| = 1$  und  $|C_2| = 0$  oder umgekehrt annehmen, wodurch die Nebendia-

<sup>67</sup> Fox, M. (Oxford University Press, 2007)

<sup>68</sup> Wüst, G. *et al.*, *Nat. Nanotechnol.* **11** (2016)

<sup>69</sup> Kuhlmann, A. V. *et al.*, *Nat. Phys.* **9** (2013)

<sup>70</sup> Hansom, J. *et al.*, *Nat. Phys.* **10** (2014)

<sup>71</sup> Monniello, L. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **111** (2013)

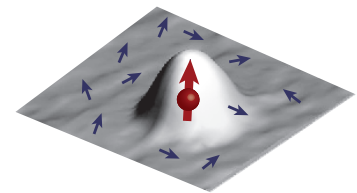


Abbildung 2.22: Ein Elektronenspin (roter Pfeil) in einem QP wechselwirkt mit dem Kernspinbad (blaue Pfeile).

<sup>72</sup> Astafiev, O. *et al.*, *Science* **327** (2010)

gonale der Matrix verschwinden. Bei einem kohärenten Superpositionszustand hingegen können  $|C_1|$  und  $|C_2|$  beliebige Werte zwischen 0 und 1 annehmen.

Die Zeitentwicklung des gemischten Zustandes ist durch die Von-Neumann'sche Bewegungsgleichung<sup>73,74</sup> gegeben:

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} [\hat{\rho}, \hat{H}]. \quad (2.31)$$

Zunächst werden die einzelnen Elemente der Dichtematrix ohne spontane Emission berechnet und die Wirkung der spontanen Emission hinzugefügt. Das Verhalten des Zwei-Niveau-Systems in einem kohärenten Lichtfeld mit  $T_1$  und  $T_2$ -Zeit wird nun durch die optischen Blochgleichungen beschrieben:<sup>75</sup>

$$\frac{d\rho_{22}}{dt} = -\frac{1}{2}i\Omega(\rho_{12} - \rho_{21}) - \frac{2}{T_1}\rho_{22} \quad \text{und} \quad (2.32)$$

$$\frac{d\rho_{12}}{dt} = \frac{1}{2}i\Omega(\rho_{11} - \rho_{22}) + (i(\omega_0 - \omega) - \frac{1}{T_2})\rho_{12}. \quad (2.33)$$

Die verbleibenden Matrixelemente können mit  $\rho_{11} + \rho_{22} = 1$  und  $\rho_{21} = \rho_{12}^*$  bestimmt werden. Es ergibt sich für das Gleichgewicht:

$$\rho_{22}(\infty) := n = \frac{1}{2} \frac{T_1/T_2 \Omega^2}{\Delta\omega^2 + 1/T_2^2 + T_1/T_2 \Omega^2}. \quad (2.34)$$

Diese Gleichung beschreibt die Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Zustandes in einem Zwei-Niveau-System in Abhängigkeit von der Rabi-Frequenz  $\Omega$  und der Verstimmung  $\Delta\omega$ . Hiermit lässt sich die Rekombinationsrate eines Exzitons in einem Quantenpunkt mit

$$\gamma_{rec} = 2 \frac{1}{T_2} \rho_{22} \quad (2.35)$$

berechnen. Die Rekombinationsrate ist ein Maß für die RF-Intensität eines exzitonischen Übergangs im QP und hängt von der  $T_1$ - und  $T_2$ -Zeit, der Verstimmung zwischen Laserenergie und Resonanzenergie  $\Delta\omega$  und der Rabi-Frequenz  $\Omega$  ab.

#### 2.5.4 Sättigung

Die Rabi-Frequenz wiederum wird durch die Anregungsleistung  $p$  des Lasers mit  $p \propto \Omega^2$  bestimmt, sodass Gleichung 2.34 das leistungsabhängige Verhalten der resonanten Fluoreszenz eines einzelnen QPs beschreibt. Die Rabi-Frequenz  $\Omega$  im Zähler dieser Besetzung führt mit angenommener Dephasierung zu einem Sättigungseffekt, siehe Abbildung 2.23, d. h. die Besetzung des oberen Zustands strebt bei hohen Leistungen gegen 1/2. Hier ist der QP mit einer Wahrscheinlichkeit von 50 Prozent mit einem Exziton besetzt und es stehen so viele Laserphotonen zur Verfügung, dass der Übergang des Exzitons mit der gleichen Rate absorbiert und rekombiniert ( $\gamma_{abs} = \gamma_{rec}$ ). Die Sättigung tritt ein, sobald  $\Omega^2 > 1/(T_1 T_2)$  ist, wie in Gleichung 2.34 zu erkennen.

<sup>73</sup> Nolting, W. (Springer, 2009)

<sup>74</sup> Bloch, I. (Johannes-Gutenberg-Universität, 2004)

<sup>75</sup> Loudon, R. (Oxford University Press, 2010)

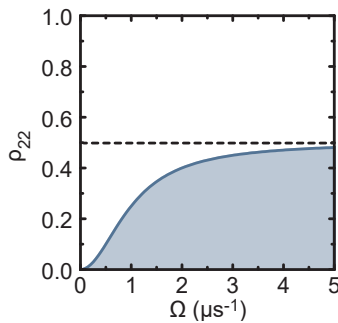


Abbildung 2.23: Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Zustandes in einem Zwei-Niveau-System in Abhängigkeit von der Rabifrequenz mit  $p \propto \Omega^2$  und  $T_1 = T_2 = 1 \mu\text{s}$ .



### 2.5.5 Linienbreiten

Als Folge der Sättigung eines Überganges ergibt sich die Leistungsverbreiterung<sup>76</sup> der Emissionslinie.<sup>77</sup> Die Besetzung des oberen Niveaus nimmt zunächst proportional zu der eingestrahnten Anregungsleistung zu, bis die Sättigung erreicht wird. Bis zu dieser Anregungsleistung wird keine Änderung der Breite der Emissionslinie erwartet. Die maximale Besetzung des obersten Zustandes wird zuerst in der Mitte der Resonanz erreicht, d.h. hier sättigt die Emission schon bei niedrigeren Leistungen als an den Flanken. Die Besetzung kann also an den Flanken noch zunehmen, wenn das Zentrum der Linie bereits gesättigt ist, wodurch es zu einer Verbreiterung der Linie kommt die durch<sup>78</sup>

$$FWHM = \frac{2}{T_2} \sqrt{1 + \Omega^2 T_1 T_2} \quad (2.36)$$

gegeben ist. Die Sättigungsverbreiterung verbreitert die Resonanz eines Übergangs in einer resonanten Messung unabhängig von Dephasierungsprozessen.

Dephasierungsprozesse werden bei niedrigen Anregungsleistungen, bei denen die Leistungsverbreiterung nicht stattfindet, gemessen. Die Linienbreite ist dann direkt durch die  $T_2$ -Zeit gegeben:

$$FWHM(\Omega = 0) = \frac{2}{T_2}. \quad (2.37)$$

Die  $T_1$ -Zeit wird, bei  $T = 0\text{ K}$  und niedrigen Anregungsleistungen, in der Linienbreite der Resonanz gemessen. Hier wird die Breite der Resonanz nicht durch Phononen oder die Leistungsverbreiterung beeinflusst, sie wird auch als transform-limitierte oder natürliche Linienbreite bezeichnet.

In selbstorganisierten QPen ist es schwierig die transform-limitierte Linienbreite zu messen, weil die Resonanzfrequenz des QPs durch Ladungs- und Spinrauschen stark fluktuiert. Die Dephasierung durch das Ladungs- und Spinrauschen findet mit Frequenzen unter 100 kHz statt,<sup>79</sup> die im Vergleich zur strahlenden Rekombination (die im Bereich von Gigahertz liegt) langsam ist. Somit konnte durch eine Erhöhung der Messfrequenz über 50 MHz die natürliche Linienbreite eines Übergangs von  $0.7\text{ }\mu\text{eV}$  gemessen werden. In Messungen mit einer kleineren Messfrequenz wird eine Linienbreite gemessen, die etwa einen Faktor zwei größer ist. Diese Verbreiterung der Linie durch die Ladungs- und Spinfluktuationen reduziert die Kohärenz und die Ununterscheidbarkeit der Photonen, die vom QP emittiert werden. Beides sind Voraussetzungen für den Einsatz von QPen in der Quanteninformationstechnologie. Es gibt Ansätze die QP-Emission über eine externe Rückkopplungsschleife<sup>80</sup> zu stabilisieren, bei der die Resonanzfrequenz mit Hilfe der Gatespannung und dem Stark-Effekt bei Schwankungen zurückgeführt wird.<sup>81,82</sup> Die aktive Stabilisierung der QP-Emission ist jedoch sehr langsam, weshalb noch nach Methoden gesucht wird die Linienbreite der QPe für eine Anwendung in der Quanteninformationstechnologie zu minimieren.

<sup>76</sup> Englisch: Power broadening

<sup>77</sup> Loudon, R. (Oxford University Press, 2010)

<sup>78</sup> Muller, A. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **99** (2007)

<sup>79</sup> Kuhlmann, A. V. *et al.*, *Nat. Phys.* **9** (2013)

<sup>80</sup> Englisch: Feedback loop

<sup>81</sup> Prectel, J. H. *et al.*, *Phys. Rev. X* **3** (2013)

<sup>82</sup> Hansom, J. *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **105** (2014)

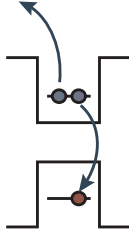


Abbildung 2.24: Auger-Rekombination in einem QP.

<sup>83</sup> Meitner, L., *Z. Phys.* 11 (1922)

<sup>84</sup> Jha, P. P. *et al.*, *ACS Nano* 3 (2009)

<sup>85</sup> Park, Y.-S. *et al.*, *ACS Nano* 8 (2014)

<sup>86</sup> Beattie, A. R. *et al.*, *Proc. Roy. Soc. A* 249 (1959)

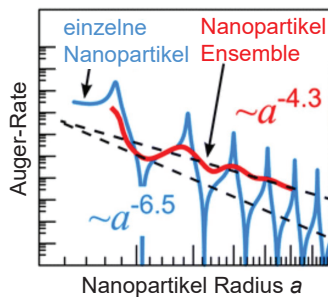


Abbildung 2.26: Auger-Rate in Nanopartikeln in Abhängigkeit von der Größe: Die Auger-Rate nimmt mit dem Radius der Nanopartikel ab (nach Vaxenburg *et al.*, 2015).

<sup>87</sup> Pietryga, J. M. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 101 (2008)

<sup>88</sup> Robel, I. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 102 (2009)

## 2.6 Auger-Rekombination

Freie Ladungsträger, die zum Rauschen der QP-Emission und damit zur Linienbreite beitragen, können auch durch eine Auger-Rekombination erzeugt werden. Der mit einem Trion besetzte QP kann nicht nur strahlend sondern auch nicht-strahlend rekombinieren. Eine solche nicht-strahlende Rekombination ist der sogenannte Auger-Effekt,<sup>83</sup> bei dem die Rekombinationsenergie eines Elektron-Loch-Paares auf einen dritten Ladungsträger übertragen wird.<sup>84,85</sup> Dieser Prozess wird hauptsächlich in Atomen oder Nanopartikeln beobachtet, weil er in stark eingeschränkten Systemen wahrscheinlicher als in ausgedehnten Festkörpern ist. Dies kann durch die verstärkte Coulomb-Wechselwirkung in eingeschränkten Systemen und die Aufweichung des Translationsimpulses erklärt werden.

In Festkörpern muss der Impuls während eines Auger-Prozesses erhalten bleiben. Deshalb ist ein Auger-Prozess in Volumenhalbleitern nur mit hoch-energetischen Ladungsträgern möglich, die auch einen Translationsimpuls übertragen (Abbildung 2.25(a)).<sup>86</sup> In Abbildung 2.25(a) sind die Bänder eines Volumenhalbleiters dargestellt, wobei im oberen Teil der Abbildung niederenergetische Elektronen und Löcher dargestellt sind, die bei der Rekombination keinen Translationsimpuls übertragen können (kein Auger-Prozess möglich). Im unteren Teil der Abbildung 2.25(a) ist ein hochenergetisches Loch in der Bandstruktur dargestellt. Bei der Rekombination eines Elektrons mit diesem Loch kann ein Translationsimpuls auf das verbleibende Elektron übertragen werden und das Elektron wird in einem Auger-Prozess energetisch angehoben.

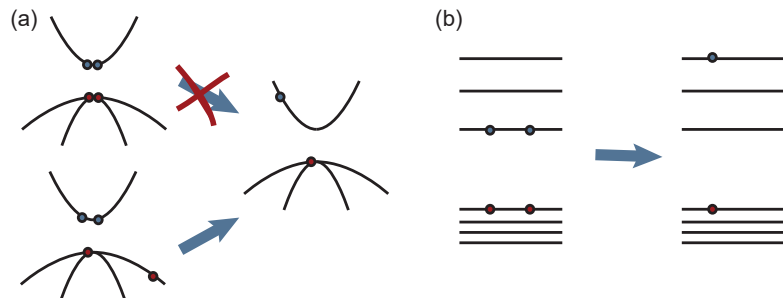


Abbildung 2.25: (a) Auger-Rekombination in einem Volumenfestkörper: Der Translationsimpuls kann nur bei der Rekombination mit einem heißen Elektron übertragen werden, sodass ein Auger-Prozess möglich wird. (b) In Quantenpunkten ist die Auger-Rekombination durch die räumliche Einschränkung und die Impulsunschärfe erlaubt.

In Nanopartikeln und Quantenpunkten ist die Impulsunschärfe, durch die starke räumliche Einschränkung der Ladungsträger, vergrößert. Somit wird eine Auger-Rekombination wahrscheinlicher und die Rate eines Auger-Prozesses nimmt zu.<sup>87,88</sup>

In Abbildung 2.26 wurde die Auger-Rate in Nanopartikeln in Abhängigkeit vom Radius der Partikel bestimmt. Die Auger-Rate nimmt mit steigendem Radius ab, d. h. sie wird stark durch den Einschluss der Ladungsträger und die daraus resultierende Coulomb-Wechselwirkung beeinflusst. Im Mittel ergibt sich die Auger-Rate in

Abhängigkeit vom Radius der Nanopartikel zu:<sup>89</sup>  $\gamma_a \propto a^{-6.5}$ , siehe Abbildung 2.26. Die Auger-Rate in selbstorganisierten QPen lässt sich mit Hilfe dieses Zusammenhangs bei einem mittleren Radius von 5 nm auf einen Auger-Prozess pro Mikrosekunde abschätzen;<sup>90</sup> etwa drei Größenordnungen länger als bei den viel kleineren kolloidalen Nanopartikeln. Hier liegt die Auger-Rate im Bereich von Nanosekunden<sup>91</sup> und reduziert die strahlende Emission der Nanopartikel stark, sodass die Effizienz von optisch aktiven Materialien mit Nanopartikeln reduziert wird.

<sup>89</sup> Vaxenburg, R. *et al.*, *Nano Lett.* **15** (2015)

<sup>90</sup> Jang, Y. D. *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **93** (2008)

<sup>91</sup> Klimov, V. I. *et al.*, *Science* **287** (2000)



# Optik an einzelnen Quantenpunkten

# 3

In diesem Kapitel wird zunächst die Probenstruktur und der Aufbau des konfokalen Mikroskops erläutert, um darauffolgend auf die Messmethode der Mikro-Photolumineszenz ( $\mu$ -PL) an einzelnen QPen einzugehen. Die  $\mu$ -PL besitzt zwar eine sehr hohe Ortsauflösung, ist aber in ihrer spektralen Auflösung auf circa  $50\text{ }\mu\text{eV}$  begrenzt. Neuste resonante Messmethoden umgehen dieses spektrale Auflösungslimit und ermöglichen hochauflösende Messungen bis unterhalb von  $1\text{ }\mu\text{eV}$  (differentielle Reflexion) in Kombination mit Einzel-Photonenzählen (resonante Fluoreszenz). Diese beiden hochauflösenden Messmethoden der differentiellen Reflexion und resonanten Fluoreszenz werden vorgestellt und typische Spektren an der verwendeten Probe gezeigt.

## 3.1 Probendesign

Die in dieser Arbeit untersuchten Probenstrukturen wurden mit Molekularstrahlepitaxie (MBE)<sup>1</sup> an der Ruhr-Universität Bochum in der Arbeitsgruppe von Prof. A. D. Wieck hergestellt. Mit dieser Methode können kristalline Schichten sub-atomlagengenau aufeinander aufgebracht werden. Die InAs-QPe sind in einer Feldeffekttransistor-Struktur<sup>2,3</sup> eingebettet, die das Anlegen eines elektrischen Feldes und das gezielte Beladen der QPe mit Elektronen ermöglicht.

Auf ein GaAs-Substrat wurde ein  $120\text{ nm}$  Übergitter aus 30 Zyklen mit jeweils  $2\text{ nm}$  AlAs und  $2\text{ nm}$  GaAs gewachsen. Das Übergitter vermindert Defekte im GaAs-Substrat, sodass ein defektfreies Wachstum möglich ist. Es folgt eine  $300\text{ nm}$  Schicht GaAs und eine  $50\text{ nm}$  Schicht siliziumdotiertes GaAs (siehe Abbildung 3.1). Die dotierte Schicht dient als Rückkontakt und Ladungsreservoir, aus dem Elektronen in den QP tunneln können. Die QPe werden anschließend durch Abscheiden von 1.9 Monolagen (ML) InAs auf das GaAs gewachsen. Zwischen den QPen und dem Rückkontakt befindet sich eine Tunnelbarriere aus GaAs und AlGaAs, über deren Dicke die Tunnelrate der Elektronen über einen sehr weiten Bereich eingestellt werden kann.

In dieser Arbeit wurden zwei unterschiedliche Proben untersucht. Die Tunnelbarriere der ersten Probe besteht aus  $15\text{ nm}$  GaAs,  $10\text{ nm}$  AlGaAs und  $5\text{ nm}$  GaAs und die Tunnelzeiten liegen im Bereich von wenigen Mikrosekunden.<sup>4</sup> Die Tunnelbarriere der zweiten Probe besteht aus  $30\text{ nm}$  GaAs,  $10\text{ nm}$  AlGaAs und  $5\text{ nm}$  GaAs und die Tunnel-

<sup>1</sup> Joyce, B. A., *Rep. Prog. Phys.* **48** (1985)

<sup>2</sup> Petroff, P. M. *et al.*, *Phys. Today* **54** (2001)

<sup>3</sup> Warburton, R. J. *et al.*, *Phys. Rev. B* **58** (1998)

<sup>4</sup> BO14425

<sup>5</sup> BO14560

zeiten liegen im Bereich von wenigen Millisekunden.<sup>5</sup> Oberhalb der InAs-QPe befindet sich bei beiden Proben eine 30 nm GaAs-Schicht und ein weiteres Übergitter aus 25 Zyklen mit jeweils 3 nm AlAs und 1 nm GaAs, welches Leckströme durch die Diodenstruktur unterdrücken soll. Abschließend wurde die Probenstruktur mit 10 nm GaAs bedeckt.

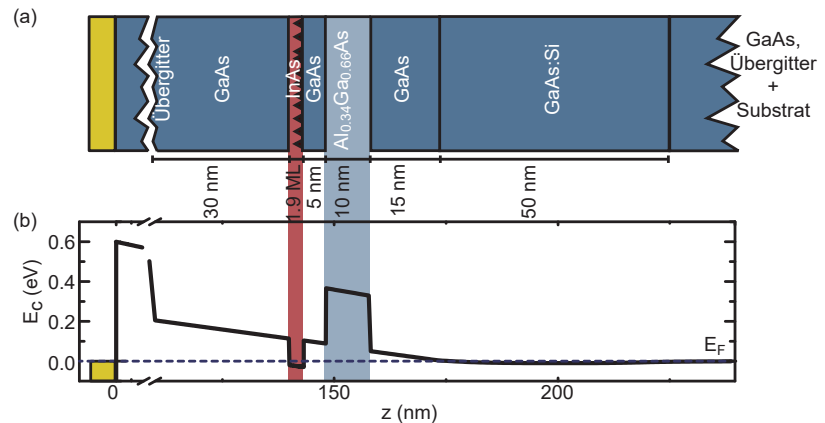


Abbildung 3.1: (a) Die in dieser Arbeit verwendete Probenstruktur mit InAs-Quantenpunkten und einer GaAs/AlGaAs-Tunnelbarriere. (b) Leitungsbandkante der Probe. Die Tunnelraten zwischen den QP-Zuständen und dem hoch-dotierten Rückkontakt als Ladungsträgerreservoir liegen bei dieser Probe im Bereich von  $\mu s^{-1}$ . (Snider, 1996)

<sup>6</sup> Der Wafer wird während des gesamten Wachstums rotiert.

<sup>7</sup> Marquardt, B. et al., *Appl. Phys. Lett.* **99** (2011)

<sup>8</sup> Leonard, D. et al., *Phys. Rev. B* **50** (1994)

<sup>9</sup> Ma, Z. et al., *Physica E* **17** (2003)

Typischerweise entsteht beim MBE-Wachstum von selbstorganisierten InAs-Quantenpunkten<sup>6</sup> eine QP-Dichte in der Größenordnung von 100 pro  $\mu m^2$ .<sup>7</sup> Bei einer so hohen QP-Dichte ist es nicht möglich in der  $\mu$ -PL einzelne QPe räumlich zu trennen. Zur Erzeugung von sehr niedrigen QP-Dichten wurde in den letzten Jahren eine Methode zum QP-Wachstum entwickelt, bei der ein Dichtegradient auf der Probe entsteht. Hierfür wird die Rotation des Wafers während des QP-Wachstums angehalten.<sup>8,9</sup> Mit dieser Methode erhält man Bereiche auf der Probe mit einer QP-Dichte von  $1 \mu m^{-2}$ , sodass sich die Quantenpunkte räumlich trennen lassen.

Zum Anlegen eines elektrischen Feldes an den QP wird mittels Photolithographie ein Gate und ein Ohmscher Kontakt auf der Probe definiert. Für den Rückkontakt werden Ni, AuGe und Au aufgedampft und bei etwa 400 °C für 10 min ausgeheizt. Das Ausheizen führt zu einem Austausch der Germanium- und Galliumatome, wodurch ein leitender Kontakt zur siliziumdotierten GaAs-Schicht hergestellt wird.<sup>10</sup> Für ein optisch transparentes Gate wird einerseits oberhalb der QP-Schicht 7 nm NiCr aufgedampft, andererseits wird zur besseren Kontaktierung am Rand zusätzlich 100 nm Gold aufgebracht. Das Gate bildet mit dem Rückkontakt eine Kondensatorstruktur mit den dazwischenliegenden AlGaAs/GaAs-Schichten als Dielektrikum. Das Anlegen einer elektrischen Spannung zwischen diesen Kontakten ermöglicht es, das elektrische Feld am Ort der Quantenpunkte zu verändern und gezielt Ladungsträger durch resonantes Tunneln aus dem Rückkontakt in die Quantenpunkte zu injizieren.

<sup>10</sup> Kim, T.-J. et al., *Crit. Rev. Solid State Mater. Sci.* **22** (1997)

### 3.2 Festkörperimmersionslinse (SIL)

Mit einer Festkörperimmersionslinse (SIL)<sup>11,12,13</sup> auf der Oberfläche der Probe wird die Einsammeleffizienz der QP-Photonen verbessert. Es wird eine Halbkugel mit einem Durchmesser von 1.5 mm verwendet, die aus Zirkonia mit einem Brechungsindex von  $n_2 = 2$ <sup>14</sup> besteht. Ohne SIL kann höchstens 2 Prozent des emittierten Lichts aus der Probe austreten, da bei GaAs mit seinem hohen Brechungsindex von  $n = 3.8$ <sup>15</sup> bereits bei einem internen Winkel von  $17^\circ$  Totalreflexion auftritt.

Die Einsammeleffizienz kann mit geometrischer Optik und Fresnels Reflexionsgesetzen für verschiedene numerischer Aperturen (NA) berechnet werden, dargestellt in Abbildung 3.2.<sup>16</sup> Die rote Linie zeigt die Einsammeleffizienz in ein Objektiv mit entsprechendem NA für eine GaAs-Probe ohne die Verwendung einer SIL. Bei einer numerischen Apertur des in dieser Arbeit verwendeten Objektivs von  $NA = 0.68$  beträgt die Effizienz etwa 1.2 Prozent, während mit einer Zirkonium-SIL die Effizienz deutlich auf 5.8 Prozent (um einen Faktor 5) erhöht wird (blaue Linie).

### 3.3 Konfokale Mikroskopie

In dieser Arbeit wurde ein konfokales Mikroskop aufgebaut, wodurch resonante und nicht-resonante Messungen an einzelnen QPen bei einer Temperatur von 4 K und in Magnetfeldern zwischen 0 und 12 T ermöglicht werden. Als nicht-resonante Messmethode wird die Photolumineszenz und als resonante Messmethoden, die differentielle Reflexion und die resonante Fluoreszenz, verwendet. Es steht ein Diodenlaser für nicht-resonante Messungen mit einer Wellenlänge von 785 nm<sup>17</sup> und zwei kontinuierlich durchstimmbare Diodenlaser<sup>18</sup> für resonante Messungen zur Verfügung. Die Wellenlängen der durchstimmbaren Laser sind zwischen 915 nm und 990 nm einstellbar.

Das konfokale Mikroskop hat eine örtliche Auflösung von  $1\ \mu\text{m}$  und besteht aus einem im flüssigen Helium gekühlten Probenstab in Kombination mit einer Freistrahloptik, die insbesondere zur Einkopplung der Laser und Auskopplung des QP-Lichts dient. Dieser sogenannte "Mikroskopkopf" mit Kamera, Strahlteiler und Diode wird oberhalb des Probenstabs angebracht, siehe Abbildung 3.3. Für die Anregung werden die entsprechenden Laser in eine Single-Mode-Faser<sup>19</sup> eingekoppelt und somit zum Anregungspfad des Mikroskopkopfes geleitet. Direkt hinter der Faser ist eine Linse in einem z-Versteller befestigt, welche das Laserlicht parallelisiert (blauer Strahlengang in Abbildung 3.3). Diese Auskopplung ist auf einem x-y-Versteller und einem Winkelversteller montiert, damit die Position des Laserstrahls und die Verkipfung im Messaufbau eingestellt werden können. Über einen 90 : 10 Strahlteiler wird der Laserstrahl zum einen auf die Probe reflektiert und zum anderen auf eine Photodiode<sup>20</sup> transmittiert (blauer Strahlengang in Abbildung 3.3). An die Photodiode ist einen Spannungsverstärker<sup>21</sup> angeschlossen, welcher

<sup>11</sup> Englisch: Solid immersion lens

<sup>12</sup> Gerardot, B. D. *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **90** (2007)

<sup>13</sup> Mansfield, S. M. *et al.*, *App. Phys. Lett.* **57** (1990)

<sup>14</sup> Wood, D. L. *et al.*, *Appl. Opt.* **21** (1982)

<sup>15</sup> Saleh, B. E. A. *et al.* (2008)

<sup>16</sup> Zwiller, V. *et al.*, *J. Appl. Phys.* **92** (2002)

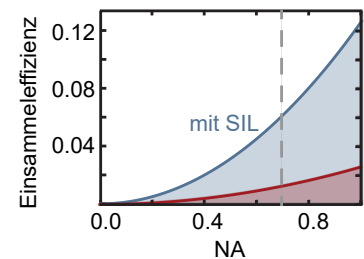


Abbildung 3.2: Einsammeleffizienz mit einer SIL aus Zirkonium auf einer GaAs Probe (blaue Linie) und ohne SIL (rote Linie). Berechnet nach (Zwiller *et al.*, 2002).

<sup>17</sup> Thorlabs LDM 785

<sup>18</sup> Toptica DL Pro

<sup>19</sup> Schäfter + Kirchhoff SMC-980-5.6-NA014-3-APC-0-500

<sup>20</sup> Thorlabs SM1PD1A

<sup>21</sup> Femto DLPCA-200

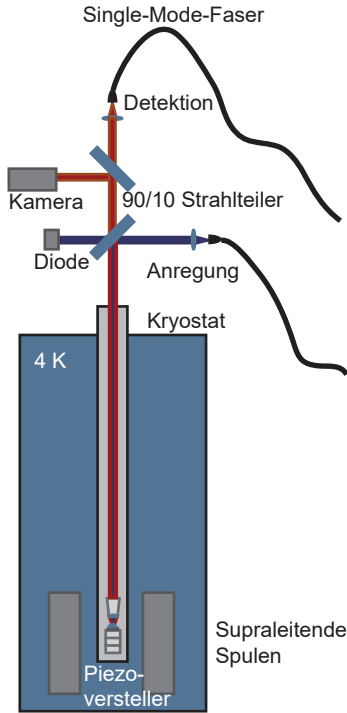


Abbildung 3.3: Konfokales Mikroskop im Badkryostaten. Die Probe ist auf drei Piezoverstellern montiert, die eine Bewegung der Probe in alle drei Raumrichtungen erlauben.

<sup>22</sup> Attocube ANPx101 und ANPz102

<sup>23</sup> Spectra Pro 2500i

<sup>24</sup> Pixies 256

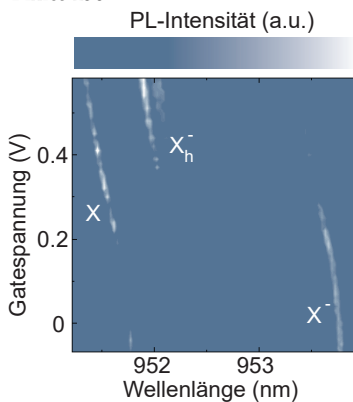


Abbildung 3.4:  $\mu$ -Photolumineszenz-Messung an einem einzelnen QP für verschiedene Gatespannungen. Es können das Exziton  $X$ , das "hot" Trion  $X_h^-$  und das Trion  $X^-$  beobachtet werden.

zur Kontrolle der eingestellten Laserleistung dient.

Der in Richtung Probe reflektierte Teil des Laserstrahls wird zunächst mit einem Mikroskopobjektiv ( $NA = 0.68$ ) fokussiert. Außerdem sammelt das Objektiv das an der Probe reflektierte Laserlicht und das Signal der Probe wieder ein. Das Messsignal wird im Mikroskopkopf durch zwei Strahlteiler geleitet (roter Strahlengang in Abbildung 3.3), wodurch jeweils 90 Prozent des Signals transmittiert und nach Passieren einer Sammellinse wiederum in eine Single-Mode-Glasfaser eingekoppelt wird. Auch dieser Teil des Aufbaus kann durch einen Winkelversteller verkippt und durch einen x-y-z-Versteller verschoben werden.

Eine Kamera hinter einem der beiden Strahlteiler dient zur Betrachtung der Probe. Der Laserbrennpunkt wird beim Alignment betrachtet und so optimal eingestellt. Hierfür wird der Strahlengang im Detektions- und Anregungspfad des Aufbaus möglichst gerade auf die Probe geleitet und beide Laserbrennpunkte übereinander gelegt.

Die Probe ist auf drei Piezoverstellern<sup>22</sup> montiert, die auch bei tiefen Temperaturen ein Verfahren der Probe um 5 mm in 5 nm Schritten in alle drei Raumrichtungen erlauben. Außerdem kann die Probe über verschiedene elektrische Zuleitungen kontaktiert werden.

### 3.4 Photolumineszenz

Für die Photolumineszenz-Messungen wird ein Laser mit einer Wellenlänge von 785 nm und einer maximalen Leistung von 20 mW verwendet. Er wird über eine Single-Mode-Faser und den Anregungspfad des konfokalen Mikroskops eingekoppelt. Das reflektierte Laserlicht wird zusammen mit der Photolumineszenz des QPs in der Detektionsfaser eingesammelt und in einem Spektrometer<sup>23</sup> analysiert. Im Spektrometer stehen drei Gitter mit unterschiedlicher Auflösung zur Verfügung (150 Striche/mm, 1200 Striche/mm, 1800 Striche/mm), wobei insbesondere für die Spektroskopie der einzelnen QPe das Gitter mit 1200 Strichen/mm verwendet wurde. Das Messsignal wird mittels einer Silizium CCD<sup>24</sup> aufgenommen und an den Computer weitergeleitet, wo es mit Hilfe des Programms WinSpec ausgelesen wird. Das Spektrometer hat mit diesem Gitter eine Auflösung von 0.06 nm (80  $\mu$ eV). Das Laserlicht wird mit einem Kantenfilter bei 900 nm und 850 nm herausgefiltert.

In Abbildung 3.4 ist eine typische PL-Messung der in dieser Arbeit verwendeten Proben bei einer niedrigen Anregungsleistung von  $1 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$  gezeigt, wobei die Anregungsleistung des Lasers über ein Filterradd eingestellt werden kann. In dieser Messung wurden für Gatespannungen von  $-0.1$  V bis 0.5 V in Schritten von 0.01 V PL-Spektren des QPs aufgenommen. Die vom Exziton emittierten Photonen haben eine Wellenlänge von circa 951.5 nm und können bei Gatespannungen zwischen 0.2 V und 0.6 V beobachtet werden. Durch die Stark-Verschiebung von etwa 1 nm/V verkleinert sich die Wellenlänge mit steigender Gatespannung. Der trionische Übergang ist in dieser Messung bei einer geringeren Gatespannung zu sehen als der



exzitonische Übergang, eine Beobachtung, die nicht durch ein Beladen des QPs über den Rückkontakt erklärt werden kann und im starken Gegensatz zu den Beobachtungen in Abbildung 2.13 steht. Die Erklärung für das unterschiedliche Verhalten der exzitonischen Übergänge bei einer Veränderung der Gatespannung liegt in der Tunnelkopplung der Quantenpunktzustände an das Reservoir. Die in Abbildung 2.13 gezeigte Messung besitzt eine sehr starke Tunnelkopplung an das Reservoir. Dies führt zu sehr hohen Tunnelraten, die jede Verschiebung aus dem Gleichgewicht (durch Änderung der Gatespannung oder Einfang von Ladungsträgern) sehr schnell durch Elektronentunneln ausgleicht. Damit wird der für eine bestimmte angelegte Gatespannung typische Grundzustand innerhalb der optischen Rekombinationszeit erreicht. Entsprechend beobachtet man in Abbildung 2.13 für jede angelegte Gatespannung nur den exzitonischen oder trionischen Übergang, abhängig davon, welcher Übergang der energetisch günstigere ist.

Durch die viel kleineren Tunnelraten (3 bis 6 Größenordnungen) zwischen QP und Rückkontakt der Probe in Abbildung 3.4 kann das Gleichgewicht zwischen Rückkontakt und QP nicht in der Rekombinationszeit des Exzitons hergestellt werden.<sup>25,26</sup> Der QP leuchtet somit bei einer festen Gatespannung durch Elektron- oder Loch-Einfang bei verschiedenen exzitonischen Übergängen. Beispielsweise wird bei einer Wellenlänge von circa 952 nm das "heiße" Trion beobachtet, welches bereits durch Jovanov et al.<sup>27</sup> gemessen wurde. Bei diesem Übergang befindet sich ein weiteres Elektron im angeregten Zustand.

<sup>25</sup> Gerardot, B. D. et al., *Nature* **451** (2008)

<sup>26</sup> Baier, M. et al., *Phys. Rev. B* **64** (2001)

<sup>27</sup> Jovanov, V. et al., *Phys. Rev. B* **84** (2011)

### 3.5 Resonante Messmethoden

Für resonante Messungen wird ein Laser verwendet, dessen Wellenlänge zwischen 915 und 990 nm kontinuierlich durchstimmbar ist. Die Frequenz dieses Lasers wird in einem Wellenlängenmeter,<sup>28</sup> das auf dem Prinzip eines Fizeau-Interferometers basiert und eine Auflösung von 2 MHz besitzt, kontrolliert. Die Laserwellenlänge kann sehr genau mittels einer PID-Regelung auf 5 MHz stabilisiert werden. Außerdem kann die Leistung des Lasers mit Hilfe eines akustooptischen Modulators<sup>29,30</sup> (AOM) stabilisiert oder gepulst werden. Bei resonanten Messmethoden gibt es unterschiedliche Möglichkeiten das Messsignal vom Lasersignal zu trennen, wobei im Folgenden genauer auf die differentielle Reflexion (DR) und resonante Fluoreszenz (RF) eingegangen werden soll; zwei Methoden, die sich in den letzten Jahren für hochauflösende Messungen an selbstorganisierten QPn etabliert haben.

<sup>28</sup> High Finess WS-U

<sup>29</sup> Peagaus SPCM-AQRH-14-FV

<sup>30</sup> Gordon, E. I., *Appl. Opt.* **5** (1966)

#### 3.5.1 Differentielle Reflexion

Die differentielle Reflexion wurde in dieser Arbeit insbesondere zur Charakterisierung der Quantenpunkte verwendet, d.h. der Bestimmung der Resonanzfrequenzen der exzitonischen Übergänge.

<sup>31</sup> Stanford Research SR830

<sup>32</sup> Englisch: Offset-voltage

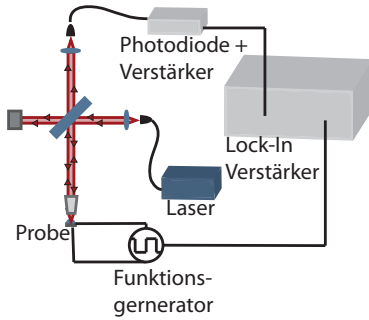


Abbildung 3.5: Aufbau für die differentielle Reflexion. Das QP-Signal wird zusammen mit dem Laserhintergrund auf einer Photodiode gemessen. Durch die Modulation des QP-Signals mit einem Funktionsgenerator am Gate kann das QP-Signal durch einen Lock-In Verstärker vom Hintergrund separiert werden.

<sup>33</sup> Femto OE-200-SI

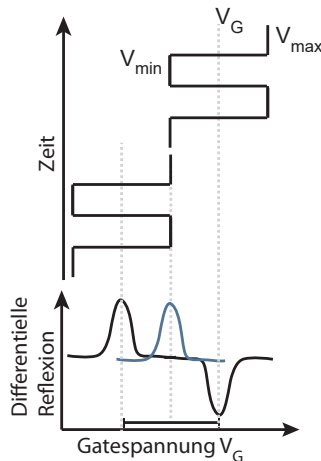


Abbildung 3.6: Veranschaulichung der Gatespannungspulse für die DR-Messung. Die Resonanz des QPs (blau) ist bei einer Versatzspannung  $V_G$  mit der unteren Gatespannung  $V_{min}$  des Pulses in Resonanz und bei einer anderen Versatzspannung  $V_G$  mit der oberen Gatespannung  $V_{max}$  des Pulses.

<sup>34</sup> Karrai, K. et al., *Superlattices Microstruct.* 33 (2003)

Bei der differentiellen Reflexion wird das QP-Signal mit Hilfe eines Lock-In Verstärkers<sup>31</sup> vom sehr starken Laserhintergrund getrennt. Während der Laser einen optischen Übergang im Quantenpunkt bei einer festen Anregungsfrequenz treibt, wird an das Gate der Probe eine gepulste Gatespannung, mit der Versatzspannung<sup>32</sup>  $V_G$ , angelegt (Abbildung 3.5). Die Versatzspannung liegt in der Mitte der beiden angelegten Spannungen des Rechteckpulses ( $V_{max}$  und  $V_{min}$ ), siehe Abbildung 3.6, d. h. es wird kontinuierlich mit der Modulationsfrequenz zwischen den beiden Spannungen  $V_{max}$  und  $V_{min}$  hin- und hergewechselt. Die Amplitude der Gatespannungspulse wird so gewählt, dass der QP nur bei einer der beiden Spannungen des Rechteckpulses ( $V_{max}$  und  $V_{min}$ ) in Resonanz mit dem Laser ist und immer zwischen Laserhintergrund mit und ohne QP-Signal gewechselt wird. Erfüllt wird diese Bedingung bei zwei Versatzspannungen, bei denen  $V_{max}$  oder  $V_{min}$  zu Resonanzen im Spektrum führen. Der Abstand der Resonanzen entspricht der Amplitude des Rechteckpulses.

Die an einem Funktionsgenerator gewählte Modulationsfrequenz der Gatespannung wird als Synchronisationssignal an den Lock-In Verstärker gegeben. Auch das Messsignal der Photodiode wird verstärkt<sup>33</sup> und an den Lock-In Verstärker weitergegeben. Das Signal der differentiellen Reflexion wird mit Hilfe einer Analog-zu-Digital-Wandlerkarte ausgelesen.

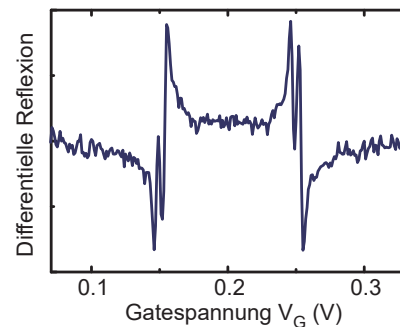


Abbildung 3.7: Differentielle Reflexion an einem exzitonischen Übergang bei einer konstanten Laserenergie von 1.3091 eV. Aufgrund der gepulsten Gatespannung werden die beiden Resonanzen bei zwei Versatzspannungen  $V_G$  beobachtet. Sie haben einen Abstand von 0.1 V. Dieser Abstand entspricht der Amplitude des Gatespannungspulses.

Die differentielle Reflexion wird für unterschiedliche Versatzspannungen, mit einer Schrittweite von 0.01 V, gemessen. Eine Messung an einem exzitonischen Übergangs ist in Abbildung 3.7 dargestellt. Die beiden Resonanzen des Exzitons werden bei 0.15 V und 0.25 V mit einem Abstand von 100 mV gemessen, welcher der Amplitude der gepulsten Gatespannung entspricht. Das Signal der differentiellen Reflexion wechselt in der Messung mehrmals das Vorzeichen, weil die Phasenbeziehungen zwischen Laser- und Quantenpunktphotonen durch die Gatespannung geändert wird, siehe Karrai et al.<sup>34</sup> für genauere Informationen zur differentiellen Reflexion.

### 3.5.2 Resonante Fluoreszenz

Die resonante Fluoreszenz (RF) erlaubt es direkt die einzelnen Photonen eines einzelnen QPs unter resonanter Anregung zu messen.<sup>35</sup> Da somit die Energie der QP-Photonen genau der Energie der Laserphotonen entspricht, muss das Laserlicht mit Hilfe von Polarisatoren<sup>36</sup> vom QP-Signal getrennt werden, siehe schematischer Aufbau in Abbildung 3.8. Zwei lineare Polarisatoren werden im Anregungs- bzw. Detektionspfad des Mikroskopkopfes in den Strahlengang eingebaut; somit gelangt linear polarisiertes Laserlicht auf die Probe und damit auch zu dem Quantenpunkt. An der GaAs-Probenoberfläche wird dieses Laserlicht zum größten Teil unter Erhaltung der Polarisation gestreut und gelangt auch mit hoher Intensität in den Strahlengang des Detektionspfades, in dem der zweite Polarisator senkrecht zum ersten dieses gestreute Laserlicht mit einem Faktor  $10^7$  unterdrückt.

Bei der resonanten Fluoreszenz wird ausgenutzt, dass der QP Photonen mit einer zum Anregungslaser gedrehten Polarisation emittiert, sodass diese zum Teil den zweiten Polarisator im Detektionsarm passieren können, siehe schematische Abbildung 3.9. Die Ursache liegt in der Asymmetrie des Quantenpunkts, welche zu einer bevorzugten QP-Polarisationsrichtung führt (siehe auch Kapitel 2.4.1), die durch den Laser angeregt werden und auch in Richtung der Polarisationsrichtung im Detektionspfad abstrahlen kann. Die vom QP emittierten einzelnen Photonen werden auf einer Avalanche-Photodiode<sup>37</sup> (APD) gezählt. Zum Auslesen der APD steht ein Zeit-in-Digital Umwandler<sup>38,39</sup> mit einer Zeitauflösung von 81 ps zur Verfügung. Diese Messmethode ermöglicht bei hoher Zeitauflösung die Beobachtung einzelner Photonen, die vom QP emittiert werden.

### 3.5.3 Messung bei unterschiedlichen Laserfrequenzen

Typischerweise wird bei einer RF-Messung die Laserfrequenz mit Hilfe eines Wellenlängenmeters auf 5 MHz konstant gehalten während die Gate-Spannung mit einer Gleichspannungsquelle variiert wird. Die exzitonen Übergänge werden bei diesem Verfahren durch den Stark-Effekt in etwa linear mit der Gatespannung geändert und so durch die Laserfrequenz geschoben. In Abbildung 3.11(a) sind die beiden Resonanzen des Exzitons (Feinstrukturaufspaltung) und in (b) die Resonanz des Trions gezeigt, sie wurden über die Anzahl der Photonen auf einer APD gemessen.

Abbildung 3.10 zeigt RF-Spektren bei verschiedenen Frequenzen des stabilisierten Anregungslasers, wobei unterhalb von 0.27 V das Exziton und oberhalb von 0.27 V das Trion erkennbar ist. Mit einer Stark-Verschiebung von  $1.2 \text{ meV/V}$  lässt sich die x-Achse in Abbildung 3.11(a) und (b) in eine Energieachse umrechnen, wodurch sich eine Feinstrukturaufspaltung des Exzitons von  $6 \mu\text{eV}$  in (a) ergibt. Außerdem wird die Verstimmung  $\Delta\omega$  zwischen der Frequenz des Anregungslasers  $\omega$  und der Resonanzfrequenz des QPs  $\omega_0$  mit  $\Delta\omega = \omega - \omega_0$  bestimmt und kann als x-Achse für die Messung verwendet werden.

<sup>35</sup> Kuhlmann, A. V. et al., *Rev. Sci. Instrum.* **84** (2013)

<sup>36</sup> Thorlabs LPVIS050-MP

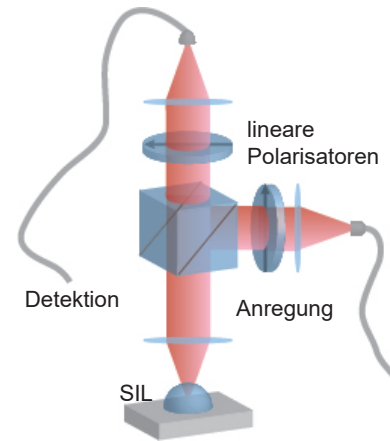


Abbildung 3.8: Aufbau für die resonante Fluoreszenz. Im Anregungs- und Detektionsarm befinden sich Polarisatoren, die das Laserlicht aus dem detektierten Signal herausfiltern.

<sup>37</sup> Excelitas SPCM-AQRH-14-FC

<sup>38</sup> Englisch: Time-to-digital converter

<sup>39</sup> Qutools Qutau

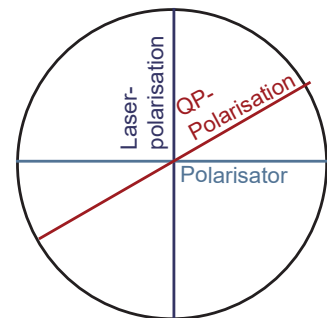


Abbildung 3.9: Darstellung der unterschiedlichen Polarisationsrichtungen für die resonante Fluoreszenz.

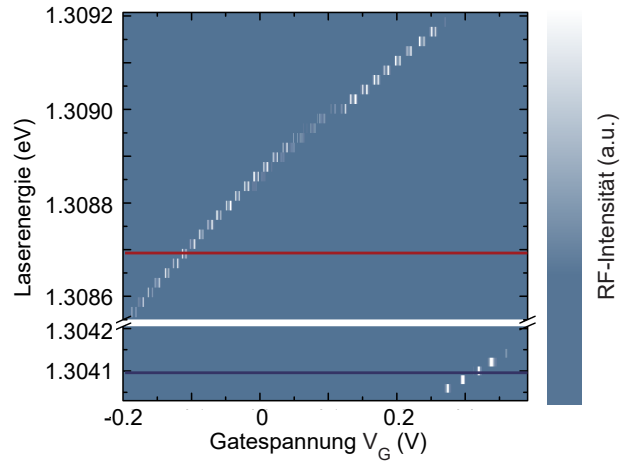


Abbildung 3.10: Exzitonische und trionische Resonanzen des QPs für verschiedene Gatespannungen und Anregungsenergien. Der Übergang vom Exziton zum Trion findet bei 0.27 V statt.

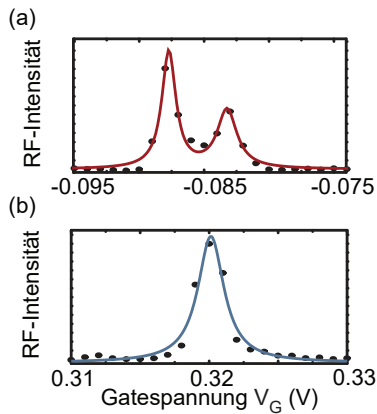


Abbildung 3.11: (a) Schnitt durch Abbildung 3.10 bei einer Laserenergie von 1.30874 eV, bei welcher das Exziton fluoresziert. (b) Schnitt durch Abbildung 3.10 bei einer Laserenergie von 1.3041 eV, bei welcher das Trion fluoresziert.

Zusätzlich zum RF-Signal des Quantenpunkts wird mit der APD auch immer ein Photonen-Untergrund detektiert, der sich aus der Dunkelzählrate der APD und dem Laseruntergrund ergibt. Die Dunkelzählrate der APD liegt unabhängig von äußeren Einflüssen bei circa 60 Photonen pro Sekunde mit einer Schwankung um etwa 20 Photonen pro Sekunde. Als Laserhintergrund werden die Photonen bezeichnet, die durch die Polarisatoren nicht unterdrückt werden können. Die Unterdrückung hängt stark von der Laserleistung und der Probenoberfläche ab, weshalb sie sich bei jeder Messung unterscheidet. Der komplette Hintergrund wird bei Gatespannungen gemessen, bei denen die Übergänge des QPs nicht in Resonanz mit dem Laser sind und kann von den Messungen nachträglich abgezogen werden.

#### 3.5.4 Messung bei unterschiedlichen Laserleistungen

In einer von der Anregungsleistung abhängigen Messung können die in Kapitel 2.5.4 und 2.5.5 beschriebene Sättigung und Verbreiterung der Resonanz durch die Anregungsleistung beobachtet werden. Hierfür wird eine feste Laserfrequenz ausgewählt und die Resonanz bei verschiedenen Anregungsleistungen mit der Gatespannung abgetastet. Mit der Laserleistung ändert sich die Rabi-Frequenz entsprechend  $\Omega \propto p^2$ , siehe auch Kapitel 2.34 und Abbildung 3.12(a). In Abbildung 3.12(a) ist die Intensität der Resonanz des Exzitons für unterschiedliche Anregungsleistungen dargestellt. Die RF-Intensität nimmt zu, bis die Absorptionsrate der Rekombinationsrate entspricht und der QP die Hälfte der Zeit mit einem Exziton besetzt ist.

Außerdem kann über eine Anpassung mit einer Lorentzkurve die Halbwertsbreite (FWHM) der Resonanz für die unterschiedlichen Leistungen bestimmt werden. Die Halbwertsbreiten der Resonanzen eines QPs werden in Abhängigkeit von der Laserleistung aufgetragen, siehe Abbildung 3.12(b). Die Resonanzbreite nimmt mit der Leistung

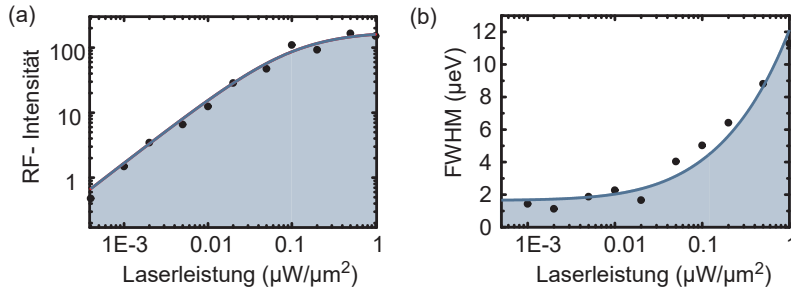


Abbildung 3.12: (a) RF-Intensität des QPs bei unterschiedlichen Anregungsleistungen. Die Sättigung der Intensität wird ab einer Anregungsleistung von  $0.5 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$  beobachtet bei der die Wahrscheinlichkeit für die Besetzung des QPs mit einem Elektron-Loch-Paar  $n = 0.5$  ist. (b) Linienbreite der QP-Resonanz in Abhängigkeit von der Laserleistung. Ab einer Leistung von  $0.01 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$  nimmt die Linienbreite durch die Leistungsverbreiterung zu.

zu, wie aus der Theorie in Kapitel 2.34 zu erwarten war. Aus der FWHM der Resonanz bei sehr niedrigen Anregungsleistungen kann die  $T_2$ -Zeit des QPs mit  $T_2 = 1.1 \text{ ns}$  bestimmt werden, siehe auch A. Muller et al. für weitere Details.<sup>40</sup>

<sup>40</sup> Muller, A. et al., *Phys. Rev. Lett.* **99** (2007)

### 3.6 Zeitaufgelöste Nichtgleichgewichts-Messung

Bei den bisher vorgestellten Messungen zur resonanten Fluoreszenz war der QP im Gleichgewicht mit dem Elektronenreservoir im Rückkontakt. Im Folgenden werden Nichtgleichgewichtsmessungen beschrieben. Zwei APDs in Kombination mit einem Zeit-zu-Digital-Konverter ermöglichen zeitaufgelöste RF-Messungen mit einer Zeitauflösung von 200 ns.

Für zeitaufgelöste Messungen wird die Gatespannung oder die Intensität des Anregungslasers gepulst. Beide Pulse können den QP aus dem Gleichgewicht mit dem Rückkontakt bringen und ermöglichen es die Relaxation des Systems aus QP und Rückkontakt zurück ins Gleichgewicht zu messen.

#### 3.6.1 Gepulste Gatespannung

Um den QP mit einer gepulsten Gatespannung ins Nichtgleichgewicht zu treiben werden Rechteckpulse über einen Pulsgenerator angelegt. Die obere Spannung des Rechteckpulses sei  $V_1$ , die untere  $V_2$ . Der Trigger des Funktionsgenerators wird an den Zeit-zu-Digital Konverter weitergegeben, er markiert jeweils den Beginn eines Pulses. Die Messung wird für ein rauscharmes Messsignal über mehrere Pulse gemittelt, wobei die Binbreite und die Pulslänge (Frequenz) der einzelnen Messungen variiert werden können.

Die Gatespannung verschiebt nicht nur die Energieniveaus des QPs im Verhältnis zum Rückkontakt, sondern auch die Resonanzenergie des QPs im Verhältnis zum Anregungslaser. Der QP ist nur bei einer der beiden Spannungen  $V_1$  oder  $V_2$  in Resonanz mit dem Laser und ein RF-Signal wird beobachtet.

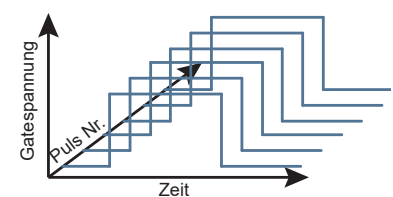


Abbildung 3.13: Zeitaufgelöste gemittelte Messung mit gepulster Gatespannung. Die Gatepulse werden mehrmals hintereinander angelegt und jeweils das Signal gemessen, sodass das Signal über alle Gatepulse gemittelt werden kann.

### 3.6.2 Gepulster Laser

Mit Hilfe eines akusto-optischen Modulators kann die Probe auch mit Laserpulsen beleuchtet werden, sodass der Einfluss eines Elektron-Loch-Paares im QP auf die resonante Fluoreszenz des QPs untersucht werden kann. Hierfür wird der Übergang im QP resonant angeregt und beobachtet, wie sich das Signal der resonanten Fluoreszenz nach Einschalten des Lasers verändert. Es kann z. B. die Intensität der resonanten Fluoreszenz abnehmen oder die energetische Lage des RF-Übergangs verschieben. Die Anstiegszeit der Laserintensität beträgt etwa 160 ns, sodass Effekte, die im Bereich von  $\mu\text{s}$  liegen, gemessen werden können. Die APD wird mit Hilfe des Zeit-zu-Digital Konverters ausgelesen und das Messsignal an den Computer weitergegeben.

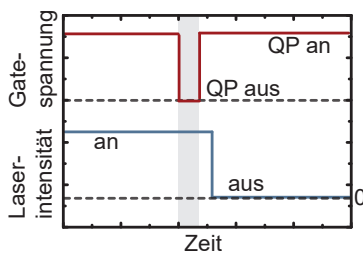


Abbildung 3.14: Hintergrundkorrektur des Messsignals. Der QP wird mit einer gepulsten Laserintensität beleuchtet. Um den Laserhintergrund vom QP Signal zu trennen, wird der QP über die Gatespannung ausgeschaltet, sodass im grau-hinterlegten Bereich nur der Laserhintergrund gemessen wird.

### 3.6.3 Hintergrundkorrektur

Bei Messungen mit einem gepulsten Laser müssen auch alle Messungen bezüglich des Laserhintergrunds korrigiert werden, wenn die reine Intensität des QPs bestimmt werden soll. Die Intensität des Laserhintergrunds wird mit einer gepulsten Gatespannungen mit den Spannungen  $V_1$  und  $V_2$  festgestellt. Diese Spannungen sind in Abbildung 3.14 rot dargestellt. Die Spannung  $V_2$  wird so gewählt, dass der QP nicht in Resonanz mit dem gepulsten Anregungslaser und damit keine Photonen emittiert. Sie wird für eine kurze Zeit angelegt, während auch der Laser eingeschaltet ist (siehe Abbildung 3.14) und nur der Laserhintergrund wird gemessen. Diese Korrektur ist wichtig um die absoluten RF-Intensitäten aus Messungen, z. B. bei unterschiedlichen Laserleistungen, zu vergleichen. Der Laserhintergrund steigt mit der Laserleistung stark an, sodass das Messsignal des QPs mit Hintergrund auch stark ansteigt und die absolute Intensität des QPs nicht ausgewertet werden kann. Von allen folgenden Messungen wurde dieser Hintergrund bereits abgezogen.

## *Teil II*

# *Tunnelndynamiken in resonanter Fluoreszenz*





# Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz

# 4

Im folgenden Kapitel wird mithilfe der zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz die Tunneldynamik zwischen einem einzelnen selbstorganisierten QP und einem Elektronenreservoir untersucht.<sup>1</sup> Es werden Spannungspulse und eine zeitaufgelöste RF-Detektion benutzt, um die Relaxationszeiten für das Tunneln zwischen QP und Ladungsreservoir zu messen. In früheren Arbeiten von Marquardt et al.<sup>2</sup> wurde mit Leitfähigkeitsmessungen das Tunneln zwischen einem Ladungsreservoir und einem Ensemble aus QPn untersucht,<sup>3</sup> es konnten aber keine einzelnen QP gemessen werden. Die optische Detektion des Ladungszustandes ermöglicht nun, das Tunneln in und aus einem *einzelnen* QP zu beobachten. Außerdem kann der Einfluss eines Elektron-Loch-Paares auf die Tunneldynamik untersucht werden. Eine deutliche Verminderung der Relaxationsrate und eine optische Blockade des Elektronentunnelns kann beobachtet werden.<sup>4</sup>

<sup>1</sup> Für diese Messungen wurde die Probe BO14225 (siehe Kapitel 3.1) verwendet.

<sup>2</sup> Marquardt, B. et al., *Nat. Commun.* **2** (2011)

<sup>3</sup> Beckel, A. et al., *Phys. Rev. B* **89** (2014)

<sup>4</sup> Kurzmann, A. et al., *Phys. Rev. Lett.* **117** (2016)

## 4.1 Übergangsbereich zwischen Exziton und Trion

In der bereits in Kapitel 3.5.3 gezeigten Abbildung 3.10 tunnelt bei einer Gatespannung von etwa 0.26 V ein Elektron in den QP, woraufhin der exzitonische Übergang unterdrückt wird und der trionische Übergang bei einer niedrigeren Anregungsenergie des Lasers erscheint. Dieser Übergangsbereich in der RF-Messung, bei dem Elektronentunneln auftritt soll nun im Folgenden genauer untersucht werden; entsprechend zeigt Abbildung 4.2 diesen Tunnelbereich in einer vergrößerten Darstellung. Die Übergänge des Exzitons und des Trions sind bei Energien von 1.309 eV und 1.304 eV im Übergangsbereich zwischen 0.26 V und 0.27 V gleichzeitig erkennbar. Dieser Bereich ist in Abbildung 4.2 rot markiert und ca. 10 mV ausgedehnt. Er kann durch die thermische Verbreiterung der Elektronenverteilung im Rückkontakt erklärt werden, welche bei 4.2 K etwa 0.3 meV beträgt. Sobald besetzte Zustände im Rückkontakt in Resonanz mit dem untersten QP-Niveau sind, tunnelt ein Elektron in den QP und der trionische Übergang wird beobachtet. Im Übergangsbereich ist ein Elektron mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit  $P$  im QP und der Übergang des Trions wird beobachtet. Mit der Wahrscheinlichkeit  $1 - P$  ist der QP unbeladen und der resonante Übergang des Exzitons ist möglich.

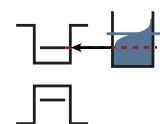


Abbildung 4.1: Tunneln eines einzelnen Elektrons in einen einzelnen QP.

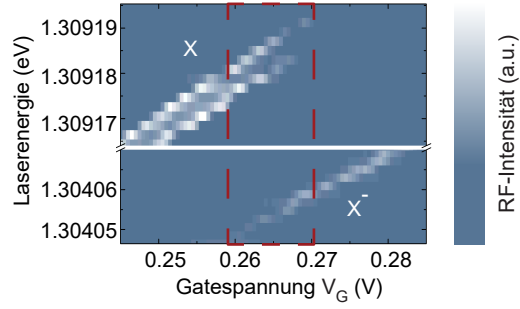


Abbildung 4.2: RF-Übersicht des QPs bei verschiedenen Gatespannungen und Anregungsfrequenzen. Bei hohen Energien ist der Übergang des Exzitons  $X$  mit einer Feinstrukturaufspaltung von  $7 \mu\text{eV}$  zu sehen. Bei niedrigeren Energien wird der Übergang des Trions beobachtet. Im rot markierten Bereich findet der Übergang zwischen Exziton und Trion statt und die strahlenden Übergänge beider Zustände können gleichzeitig gemessen werden.

#### 4.2 Messung der Relaxationsrate

<sup>5</sup> Lu, C.-Y. et al., *Phys. Rev. B* **81** (2010)

<sup>6</sup> Englisch: n-shot

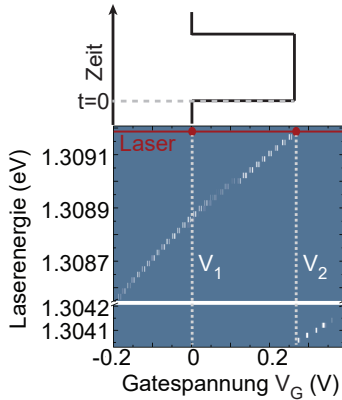


Abbildung 4.3: Gatespannungen und Laserenergie, die für die Messung in Abbildung 4.4 eingestellt wurden.

Mit der zeitaufgelösten RF-Messung wird das Tunneln eines Elektrons in einen einzelnen QP in einer Messung<sup>5</sup> mit  $n$ -Aufnahmen<sup>6</sup> beobachtet (siehe auch Abbildung 3.13). Hierfür wird eine gepulste Gatespannung mit den Spannungen  $V_1$  und  $V_2$  an das Gate angelegt und damit der Beladungszustand des QPs gesteuert. Für jede Messung wird zunächst ein leerer QP präpariert, indem die Gatespannung  $V_1 = 0 \text{ V}$  angelegt wird. Diese Spannung liegt unterhalb des Übergangsbereichs (siehe Abbildung 4.3), sodass kein Elektron in den QP tunneln kann. Die Laserenergie wird so eingestellt, dass ein RF-Signal gemessen wird, wenn die Gatespannung  $V_2$  angelegt ist. Die Spannung liegt innerhalb oder nahe an dem Übergangsbereich zwischen Exziton- und Trionresonanz (Abbildung 4.3), sodass Tunneln eines Elektrons mit der Wahrscheinlichkeit  $P$  möglich ist.

Die Gatespannung  $V_1$  ist für  $t < 0$  angelegt und der QP ist nicht in Resonanz mit dem Laser. Bei dieser Gatespannung wird kein RF-Signal in Abbildung 4.2 beobachtet. Bei  $t = 0$  wird die angelegte Spannung zu  $V_2$  gewechselt, was den QP auf zwei Arten beeinflusst.

1. Auf der einen Seite verschiebt sie den Übergang des Exzitons mit dem Stark-Effekt in Resonanz mit der Laserenergie und ein RF-Signal kann beobachtet werden, siehe Abbildung 4.5(a).
2. Und auf der anderen Seite verschiebt die angelegte Gatespannung die Energieniveaus im QP gegenüber der Fermi-Verteilung im Rückkontakt, siehe Abbildung 4.5(b).

Tunneln in den QP ist möglich, wenn besetzte Zustände im Rückkontakt in Resonanz mit leeren Zuständen im QP sind. Folglich gibt es hier eine gewisse Wahrscheinlichkeit, dass der QP mit einem Elektron besetzt wird. Das zusätzliche Elektron schaltet den Übergang des Exzitons aus, da der Übergang für einen geladenen QP (das Trion) nicht in Resonanz mit dem Laser ist. Die Entwicklung des RF-Signals von einem leeren QP zu einer thermischen Verteilung der QP-Ladung bei  $t \rightarrow \infty$  wird als exponentielle Abnahme des RF-Signals in Abbildung 4.4(a) beobachtet, wenn über  $10^6$  Spannungspulse gemittelt

wird. Die Rate, mit der diese Abnahme stattfindet, entspricht der Relaxationsrate  $\gamma_m$ , siehe auch Kapitel 2.3.1. Die relative Abnahme des RF-Signals bis  $t = 40 \mu\text{s}$  gibt an, mit welcher Wahrscheinlichkeit der QP im Gleichgewicht mit einem Elektron besetzt ist.

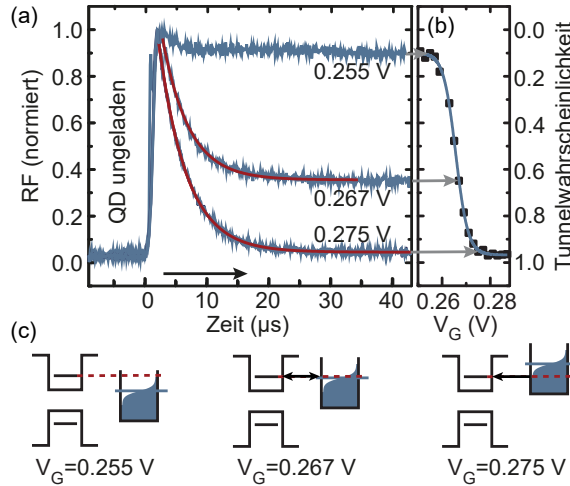


Abbildung 4.4: (a) Zeit aufgelöstes RF-Signal des Übergangs des Exzitons für drei unterschiedliche Beladespannungen  $V_2$  (Die roten Linien sind exponentielle Anpassungen, die benutzt wurden, um die Relaxationsrate zu bestimmen). (b) Normiertes RF-Signal bei  $t = 40 \mu\text{s}$  als Funktion der Gatespannung. (c) Schematische Darstellung der QP-Niveaus mit der Fermi-Energie im Rückkontakt für die drei unterschiedlichen Spannungen. Das QP-Niveau tastet mit der Gatespannung die Fermi-Verteilung der Elektronen im Rückkontakt ab.

In Abbildung 4.4(a) ist das gemittelte Tunnelsignal für drei verschiedene Gatespannungen  $V_2 = 0.255 \text{ V}$ ,  $0.267 \text{ V}$  und  $0.275 \text{ V}$  auf einer Zeitskala von Mikrosekunden dargestellt. Um die Intensitäten der Messungen vergleichen zu können, wurden alle Messungen bei  $t = 0$  auf 1 normiert. Hier ist noch kein Elektron in den QP getunnelt, somit sollte das RF-Signal bei allen Gatespannungen gleich stark sein. Die zeitliche Entwicklung für  $V_2 = 0.255 \text{ V}$  ist nahezu konstant, weil kein Tunneln in den leeren QP stattfindet. Die besetzten Zustände im Rückkontakt liegen unterhalb des ersten Niveaus im QP, siehe Abbildung 4.4(c).

Bei einer Gatespannung  $V_2 = 0.267 \text{ V}$  wird eine exponentielle Abnahme des RF-Signals bis zu einem Wert von 0.4 beobachtet. Bei dieser Gatespannung enden 60 Prozent der Messungen in einer Situation, in der ein Elektron in den QP getunnelt ist, sodass der Übergang des Exzitons nicht möglich ist. Die Elektronenverteilung im Rückkontakt ermöglicht bei dieser Gatespannung (Abbildung 4.4(c)) auch für  $t > 40 \mu\text{s}$  ein Tunneln in und aus dem QP, wodurch es zu einer Sättigung der RF-Intensität bei etwa 0.4 kommt.

Bei einer Gatespannung von  $V_2 = 0.275 \text{ V}$  wird nur zu Beginn der Messung ein RF-Signal beobachtet, welches bei  $t = 40 \mu\text{s}$  vollkommen unterdrückt wird. Der QP ist bei dieser Gatespannung im Gleichgewicht mit einer Wahrscheinlichkeit von 100 Prozent mit einem Elektron besetzt. In diesem Fall geht die Tunnelrate aus dem QP in den Rückkontakt  $\gamma_{\text{Out}}$  gegen Null und es wird nur die Tunnelrate für das Tunneln vom Rückkontakt in den QP  $\gamma_{\text{In}}$  gemessen, siehe

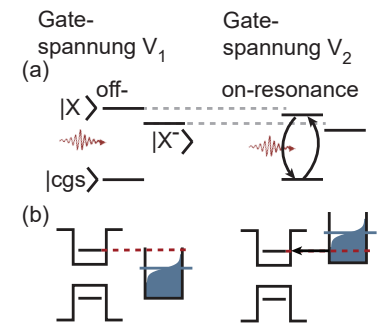


Abbildung 4.5: Einfluss der Gatespannung  $V_2$  auf den QP: (a) Der Übergang des Exzitons wird so verschoben, dass er in Resonanz mit dem Laser kommt. (b) Das QP-Niveau wird gegen die Fermi-Energie im Rückkontakt verschoben, sodass Elektronentunneln in den QP energetisch erlaubt ist.

auch Kapitel 2.3.1. Die Fermi-Funktion für die Elektronenbesetzung des Rückkontaktes nimmt hier den Wert  $\approx 1$  an und es gibt keine freien Zustände im Rückkontakt, in die ein Elektron aus dem QP tunneln könnte, siehe Abbildung 4.4(c).

Die Spannung  $V_2$  wurde in 2 mV Schritten zwischen  $V_2 = 0.252$  V und 0.288 V durchgefahren und jeweils die oben beschriebene Messung durchgeführt. Die Gleichgewichtsamplitude aus diesen Messungen ist in Abbildung 4.4(b) über der Gatespannung aufgetragen. Die blaue Linie ist eine Anpassung an die Daten mit einer Fermi-Funktion mit  $T = 4.2(\pm 0.2)$  K. Diese Temperatur stimmt sehr gut mit der Temperatur im verwendeten Heliumbadkryostaten überein. Die Tunnelwahrscheinlichkeit eines Elektrons hängt von der Elektronenbesetzung des Rückkontaktes ab, welche in der Gleichgewichtsamplitude in Abbildung 4.4(b) dargestellt ist.

### 4.3 Tunneln mit Exzitonen

Für die Messung in Abbildung 4.4 wurden Gatespannungen gewählt, bei denen ein Elektron in den leeren QP tunnelt. In Kapitel 2.18 wurde gezeigt, dass Tunneln in den QP bei niedrigeren Gatespannungen möglich ist, wenn der QP bereits mit einem Exziton besetzt ist.<sup>7</sup> Dieser Tunnelprozess wurde bis hierher vernachlässigt. Im Folgenden wird (wie in Kapitel 2.4.2 gezeigt) die Gatespannung berechnet, bei der Tunneln in den exzitonischen Zustand möglich ist.

<sup>7</sup> Kloeffer, C. et al., *Phys. Rev. Lett.* **106** (2011)

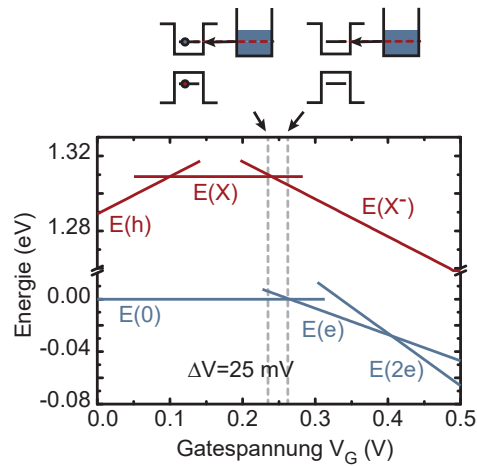


Abbildung 4.6: Berechnete Energien der einzelnen Zustände im QP in Abhängigkeit von der Gatespannung. An den Kreuzungspunkten zwischen zwei Energien findet ein Übergang zwischen den Zuständen statt. Das Tunneln in das Exziton ist etwas 25 mV unterhalb des Tunnelns in den leeren QP möglich.

Die Spannung, bei der ein Elektron in den QP tunneln kann, wird aus dem RF-Raster in Abbildung 4.2 bestimmt. Diese Spannung entspricht dem Schnittpunkt zwischen der Energie des leeren QPs und der Energie des einfach-besetzten QPs. Mit dieser Gatespannung kann aus dem RF-Raster und Gleichung 2.9 die Lokalisierungsenergie eines Elektrons im QP  $E_C = 172$  meV berechnet werden. Bei der Gatespannung  $V_G = 0.37$  V ist das Trion im Frequenzraster in Abbildung 3.10 nicht mehr zu erkennen, weil ein zweites Elektron in

den QP tunnelt. Bei dieser Gatespannung schneiden sich die Energie des einfach-beladenen QPs und die Energie des zweifach-beladenen QPs. Mit diesem Schnittpunkt kann die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Elektronen  $C_{ee} = 28 \text{ meV}$ , mit Gleichungen 2.9 und 2.10, berechnet werden. Des Weiteren erhält man die Coulomb-Wechselwirkung zwischen einem Elektron und einem Loch  $C_{eh} = 33 \text{ meV}$  und die Bandlückenenergie  $E_g = 1342 \text{ meV}$ . Die berechneten Energien in Abhängigkeit von der angelegten Gatespannung sind in Abbildung 4.6 dargestellt. Der Schnittpunkt zwischen der Energie des Exzitons  $E(X)$  mit der Energie des Trions  $E(X^-)$  markiert hier die Gatespannung, bei der ein Elektron in den QP tunnelt kann, wenn er bereits mit einem Exziton besetzt ist. Sie liegt etwa 25 mV unterhalb der Gatespannung, bei der Tunneln in den leeren QP möglich ist, d. h. Tunneln in den exzitonischen Zustand bei Gatespannungen unter 0.255 V ist energetisch erlaubt. Bei dieser Gatespannung fällt die RF-Intensität der zeitaufgelösten Messung in Abbildung 4.4(a) um etwa 10 Prozent ab. Entsprechend ist ein Elektron mit einer Wahrscheinlichkeit von 10 Prozent in den QP getunnelt, wenn er mit einem Exziton besetzt ist.

#### 4.4 Erwartete Relaxationsrate

Die Raten, mit der die Elektronenverteilung zwischen Rückkontakt und QP ins Gleichgewicht relaxiert, wird durch exponentielle Anpassungen an die Messdaten in Abbildung 4.4(a) bestimmt. Die Relaxationsrate  $\gamma_m = 230(\pm 30) \text{ ms}^{-1}$  ist für den ganzen Gatespannungsbe-  
reich unabhängig von der Gatespannung (schwarze Punkte in Abbildung 4.10(a)). Vorherige Untersuchung mittels Transportmessungen an Ensembles von Quantenpunkten<sup>8</sup> in Kombination mit einem theoretischen Modell<sup>9</sup> hatte aber bereits gezeigt, dass die Relaxationsrate abhängig von der Elektronenverteilung im Rückkontakt (und damit von der Gatespannung) ist. Diese Diskrepanz soll im Folgenden aufgeklärt werden und wird zeigen, dass die optische Anregung einen großen Einfluss auf die Elektronendynamik besitzt.

Nach Rechnungen, die auf Mastergleichungen basieren,<sup>10,11,12</sup> ist die Relaxationsrate ohne optische Anregung durch

$$\gamma_m = \gamma_{Out} + \gamma_{In} \quad (4.1)$$

gegeben, mit den Tunnelraten für das Hinein- und Heraustunneln  $\gamma_{In}$

$$\gamma_{In} = d_{In} \Gamma f(E) \quad \text{und} \quad (4.2)$$

$$\gamma_{Out} = d_{Out} \Gamma (1 - f(E)). \quad (4.3)$$

Hier ist  $\Gamma$  die Übergangsrate durch die Tunnelbarriere (siehe Gleichung 2.8) und  $d$  die Zahl der möglichen Tunnelkanäle in oder aus dem QP. In Gleichung 4.2 ist  $d_{In} = 2$  wegen der doppelten Spinartung des leeren QPs. Ein einfach-besetzter QP kann nur über einen Kanal entladen werden, siehe Abbildung 4.7, wodurch sich  $d_{Out} = 1$  in Gleichung 4.3 ergibt.<sup>13</sup> Die Transport-Tunnelraten  $\gamma_{In}$  und  $\gamma_{Out}$

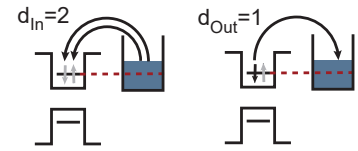


Abbildung 4.7: Anzahl der Tunnelkanäle für das Tunneln in und aus einem QP in Transportmessungen.

<sup>8</sup> Beckel, A. et al., *Europhys. Lett.* **106** (2014)

<sup>9</sup> Beenakker, C. W. J., *Phys. Rev. B* **44** (1991)

<sup>10</sup> Beckel, A. et al., *Europhys. Lett.* **106** (2014)

<sup>11</sup> Beenakker, C. W. J., *Phys. Rev. B* **44** (1991)

<sup>12</sup> Gustavsson, S. et al., *Surf. Sci. Rep.* **64** (2009)

<sup>13</sup> Gustavsson, S. et al., *Surf. Sci. Rep.* **64** (2009)

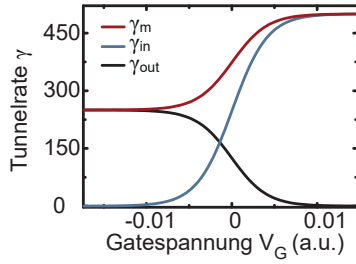


Abbildung 4.8: Tunnelraten, die im Transport für das Tunneln in den QP  $\gamma_{in}$  und aus dem QP  $\gamma_{out}$  gemessen werden. In rot ist die Relaxationsrate  $\gamma_m$  dargestellt, sie hängt in Transportmessungen von der Gatespannung ab.

#### 4.5 Optische Blockade

Die gatespannungsunabhängige Relaxationsrate in den RF-Messungen kann durch die optische Anregung erklärt werden. Um den Einfluss des exzitonischen Zustandes auf die Tunnelrate in die Rechnung mit einzubeziehen, werden die Ratengleichungen erweitert, sodass auch die optische Anregung und Rekombination mit eingeht, wie in Abbildung 4.9 dargestellt. Hier wurde zu einem Energieschema für die Vielteilchenzustände im QP gewechselt, um die einzelnen Raten und Zustände einfacher darstellen zu können. Die Energien der einzelnen Zustände können in Abbildung 4.6 bei einer festen Gatespannung  $V_G = 0.257$  V abgelesen werden.

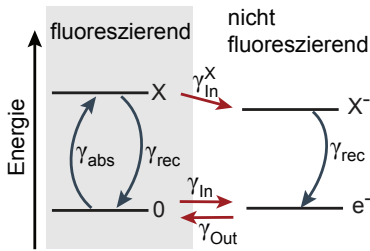


Abbildung 4.9: Energieschema der fluoreszierenden und nicht-fluoreszierenden Zustände bei einer Gatespannung um 0.257 V, bei der die Energie des Grundzustandes 0 mit der Energie des  $e^-$  Zustands übereinstimmt. Die Pfeile zeigen optische und Transportübergänge mit den jeweiligen Raten  $\gamma$ .

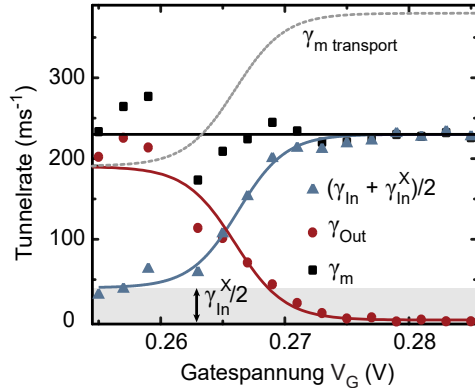


Abbildung 4.10: Reine Tunnelraten  $\gamma_{in}$  und  $\gamma_{out}$  (Datenpunkte) und Anpassungen mit der Fermi-Funktion (durchgezogene blaue und rote Linien), aufgetragen über der Gatespannung. Außerdem wurden die gemessenen Relaxationsraten  $\gamma_m$  (schwarze Rechtecke) und die Relaxationsrate die im Transport an QPn erwartet wird  $\gamma_{m transport}$  (grau gestrichelte Linie) über die Gatespannung aufgetragen. Die schwarze Linie zeigt eine Anpassung der theoretischen Relaxationsrate an die Messdaten.

Der QP wird aus dem Grundzustand (0) mit der Absorptionsrate  $\gamma_{abs}$  in den angeregten Zustand angehoben. Danach ist der QP mit einem Exziton (X) besetzt. Das Exziton im QP rekombiniert mit der Rekombinationsrate  $\gamma_{rec}$  und der QP befindet sich wieder im Grundzustand. Im Grundzustand kann ein Elektron mit der Rate  $\gamma_{in}$  in den QP tunneln oder mit der Rate  $\gamma_{out}$  den QP verlassen. Außerdem wird eine Tunnelrate für das Tunneln in den exzitonischen Zustand  $\gamma_{in}^X$  eingeführt. Das Tunneln aus dem Trion ist nicht möglich, weil die Energie des Trions  $\approx 5$  meV unterhalb der Energie des Exzitons liegt. Das Elektron müsste unterhalb der Fermi-Energie in den Rückkontakt tunneln, was nach Pauli verboten ist. Also wird zuerst das Trion rekombinieren und dann das Elektron aus dem QP tunneln.

Für die Rechnung wird zwischen fluoreszierendem und nicht-

fluoreszierendem Zustand unterschieden. Der fluoreszierende Zustand umfasst den leeren QP und das Exziton. Der nicht-fluoreszierende Zustand beinhaltet das Trion und den einfach geladenen QP. Diese Zustände können nicht durch den Laser getrieben werden; daher nicht-fluoreszierend.

Mit der Annahme, dass die Rekombinationsrate viel größer als die Tunnelraten ist, kann eine Ratengleichung aufgestellt werden. Der QP geht mit der Rate  $\gamma_{In}$  aus dem fluoreszierenden in den nicht-fluoreszierenden Zustand über, wenn kein Exziton im QP ist. Hieraus ergibt sich der erste Teil der Ratengleichung. Ist der QP im nicht-fluoreszierenden Zustand, geht er mit der Rate  $\gamma_{Out}$  in den fluoreszierenden Zustand über, woraus sich der zweite Teil der Ratengleichung ergibt. Außerdem kann ein Elektron in den mit einem Exziton besetzten QP tunneln und der QP geht mit der Rate  $\gamma_{In}^X$  in den nicht-fluoreszierenden Zustand über. Es ergibt sich für die Ratengleichungen

$$\dot{P}_f(t) = -(1-n)\gamma_{In}P_f(t) + \gamma_{Out}P_{nf}(t) - n\gamma_{In}^X P_f(t), \quad (4.4)$$

$$\dot{P}_{nf}(t) = -\dot{P}_f(t), \quad (4.5)$$

wobei  $P_{nf}$  und  $P_f$  die Wahrscheinlichkeiten für den nicht-fluoreszierenden und den fluoreszierenden Zustand sind.  $n$  ist die Wahrscheinlichkeit für die Besetzung des QPs mit einem Exziton und kann zwischen 0 und 0.5 eingestellt werden. In der Sättigung  $n = 0.5$  entspricht die Rekombinationsrate  $\gamma_{rec}$  der Absorptionsrate  $\gamma_{abs}$  im QP und der QP ist die Hälfte der Zeit mit einem Exziton besetzt.  $n = 0$  entspricht einer geringen Anregungsleitung, siehe auch Kapitel 2.5.3, Gleichung 2.34.

Die Anfangsbedingungen  $P_f(0) = 1$  und  $P_f + P_{nf} = 1$  werden genutzt um die Gleichungen 4.4 und 4.5 zu lösen. Es ergibt sich

$$P_f(t) = \frac{(\gamma_m - \gamma_{Out})e^{-\gamma_m t} + \gamma_{Out}}{\gamma_m}, \quad (4.6)$$

mit der Relaxationsrate

$$\gamma_m = \gamma_{Out} + (1-n)\gamma_{In} + n\gamma_{In}^X. \quad (4.7)$$

Die Messungen in Abbildung 4.4(a) spiegeln direkt die Wahrscheinlichkeit wieder, dass der QP mit einem Elektron geladen ist. Deshalb beschreibt  $P_f(t)$  direkt die gemessenen Transienten mit der Zerfallskonstante  $\gamma_m$ . Die Rate  $\gamma_{In}^X$  ist konstant, d.h. sie hängt im gemessenen Bereich nicht von der Gatespannung ab, da das Tunneln unterhalb der Fermi-Energie im Rückkontakt stattfindet und damit  $f(E) = 1$  ist. Die verbleibenden zwei Terme in Gleichung 4.7 sind den Raten aus Transportmessungen ähnlich, sie haben nur einen zusätzlichen Faktor  $n$ , sodass der einstellbare Faktor  $0 < n < 0.5$  die Tunnelrate unter Beleuchtung reduziert.

Der QP wird in der Sättigung angeregt, sodass die optische Blockade den Entartungsfaktor von 2 aus Gleichung 4.2 kompensiert. Dies führt zu einer Relaxationsrate

$$\gamma_m = \Gamma(1 - f(E)) + 0.5 \cdot 2 \cdot f(E)\Gamma + 0.5\gamma_{In}^X = \Gamma + 0.5 \cdot \gamma_{In}^X, \quad (4.8)$$



die unabhängig von der Fermi-Energie im Rückkontakt ist. Diese Voraussage stimmt gut mit den Messungen in Abbildung 4.10 (schwarze Messdaten und schwarze Linie) überein. Zum Vergleich zeigt die graue gestrichelte Linie die reine Relaxationsrate im Transport ohne optische Anregung.

Mit einer Anpassung von Gleichung 4.6 an die Transienten der zeitaufgelösten Messungen können die reine Tunnelrate für das Tunneln aus dem QP  $\gamma_{Out}$  (rote Punkte in Abbildung 4.10) und die Relaxationsrate  $\gamma_m$  (schwarze Vierecke) bestimmt werden. Die Tunnelrate von Elektronen aus dem QP,  $\gamma_{Out}$ , nimmt mit steigender Gatespannung von  $200 \text{ ms}^{-1}$  auf Null ab, wenn die Fermi-Verteilung im Rückkontakt abgetastet wird. Die Tunnelrate für das Tunneln in den QP,  $(\gamma_{In} + \gamma_{In}^X)/2 = \gamma_m - \gamma_{Out}$  (blaue Dreiecke), kann mit Gleichung 4.7 berechnet werden, sie nimmt von  $50 \text{ ms}^{-1}$  auf  $230 \text{ ms}^{-1}$  zu, wenn die Fermi-Verteilung im Rückkontakt im Verhältnis zum Energieniveau im QP verändert wird. Die Tunnelrate in den QP wird im gemessenen Spannungsbereich nicht Null, weil die Elektronen in den QP tunneln können, sobald er mit einem Exziton besetzt ist.

#### 4.6 Optisches Regeln der Relaxationsrate

Im Folgenden soll gezeigt werden, dass die Relaxationsrate über die Anregungsleistung des Lasers eingestellt werden kann,<sup>14</sup> hierfür wird die Besetzungswahrscheinlichkeit des QPs mit einem Exziton mit der Laserleistung zwischen  $n = 0$  und  $n = 0.5$  eingestellt und jeweils die Relaxationsrate (blaue Datenpunkte in Abbildung 4.11) und die RF-Intensität (schwarze Datenpunkte) gemessen. Für diese Messung wurde eine Spannung gewählt, bei der nur Tunneln in den QP stattfindet und das Elektron nicht aus dem QP heraustunnelt, sodass die Relaxationsrate  $\gamma_m$  der Tunnelrate in den QP  $\gamma_{In}$  entspricht.

<sup>14</sup> Für diese Messung wurde ein anderer QP verwendet, weshalb die Relaxationsraten nicht mit den vorherigen Messungen vergleichbar sind.

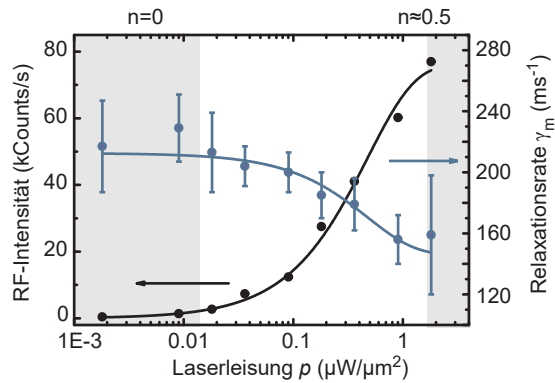


Abbildung 4.11: Relaxationsrate  $\gamma_m$  (blaue Messpunkte) und RF-Intensität des QPs (schwarze Messpunkte) für unterschiedliche Anregungsleistungen. Ein deutlicher Abfall der Tunnelrate mit zunehmender Leistung wird beobachtet, der durch den Einfluss der optischen Anregung auf die Entartung der QP-Niveaus erklärt werden kann. Die schwarze Kurve ist eine Anpassung der Sättigungskurve (Gleichung 2.34) an die Messdaten der RF-Intensität und die blaue Kurve ist eine Anpassung von Gleichung 4.9 mit Gleichung 2.34 an die gemessenen Relaxationsraten.

Aus Gleichung 4.7 ergibt sich dann für die Abhängigkeit der Relaxationsrate von der Besetzung des QPs mit einem Elektron-Loch-



Paar:

$$\gamma_m(n) = (1 - n)2\Gamma + n\gamma_{In}^X. \quad (4.9)$$

Für sehr niedrige Anregungsleistungen geht die Relaxationsrate entsprechend gegen  $2\Gamma$  und für sehr hohe Anregungsleistung gegen  $\Gamma + 0.5\gamma_{In}^X$ . Für  $\Gamma = \gamma_{In}^X$  entspricht dies einer Änderung der Relaxationsrate um einen Faktor von 0.75. In Abbildung 4.11 wird eine Änderung der Relaxationsrate um einen Faktor 0.7 gemessen. Es zeigt sich also, dass die Tunnelrate mit der resonanten Laseranregung geändert werden kann und die Änderung in etwa der Vorhersage aus den Rechnungen entspricht.

Dieses "optische Blockieren" des Tunnelns kann durch die Spinentartung erklärt werden. Ist ein Exziton im QP, wird die Zahl der möglichen Tunnelkanäle für das Tunneln in den QP  $d_{In}$  von 2 auf 1 reduziert, da nur ein Tunnelkanal des tunnelnden Elektrons möglich ist, siehe Abbildung 4.12. Der QP ist in der Sättigung die Hälfte der Zeit mit einem Exziton besetzt, weshalb die mittlere Zahl der Tunnelkanäle 1.5 ist. Durch die Reduzierung der Zahl der Tunnelkanäle nimmt die Relaxationsrate durch die optische Anregung ab.

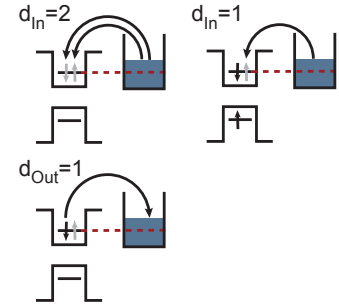


Abbildung 4.12: Mögliche Tunnelkanäle in und aus dem QP unter optischer Anregung. Die Zahl der Tunnelkanäle für das Elektronentunneln in den QP wird mit einem Elektron-Loch-Paar im QP von 2 auf 1 reduziert.

#### 4.7 Tunneln eines zweiten Elektrons

Mit Hilfe der zeitaufgelösten RF-Messung kann auch das Tunneln in andere Zustände untersucht werden, z.B. das Tunneln eines zweiten Elektrons in den einfach-beladenen QP. In Abbildung 4.17(a) sind drei repräsentative Transienten in einem Gatespannungsbereich, in dem ein zweites Elektron aus dem QP tunneln kann, gezeigt (Abbildung 4.13). Hier ist das Messsignal die RF des Trions. Zu Beginn der Messung wird die Gatespannung  $V_1 = 0.41$  V angelegt (Abbildung 4.14), bei der der QP mit zwei Elektronen geladen und nicht in Resonanz mit dem Laser ist. Bei  $t = 0$  wird die Gatespannung zu  $V_2 = 0.352$  V geändert, bei dieser Gatespannung ist das Tunneln eines Elektrons aus dem QP möglich. Außerdem passt der Übergang des Trions zur Laserenergie und ein ansteigendes RF-Signal wird beobachtet. Der QP strebt das Gleichgewicht mit dem Rückkontakt an und es gibt eine gewisse Wahrscheinlichkeit, den QP im einfach-geladenen Zustand zu finden, siehe Abbildung 4.17(a). Die Relaxationsrate für das Elektronentunneln  $\gamma_m$  kann aus den Messungen in Abbildung 4.17(a) bestimmt werden und hängt stark von der Gatespannung ab, siehe Abbildung 4.17(b). Die Rate nimmt von etwa  $800\text{ms}^{-1}$  auf fast 0 ab. Hier spiegelt sich die Fermi-Verteilung im Rückkontakt wieder.

Um die Gatespannungsabhängigkeit der Relaxationsrate  $\gamma_m$  zu erklären, werden wiederum Ratengleichungen verwendet. Bei dieser Messung besteht der fluoreszierende Zustand aus dem einfach-geladenen QP ( $e^-$ ) und dem Trion ( $X^-$ ). Das Trion wird mit der Absorptionsrate  $\gamma_{abs}$  angeregt und rekombiniert mit der Rate  $\gamma_{rec}$ , siehe Abbildung 4.15. Außerdem kann bei der gewählten Gatespannung ein weiteres Elektron mit der Rate  $\gamma_{In2}$  in den QP tunneln und der QP ist zweifach-geladen ( $2e^-$ ), oder ein zweites Elektron kann mit

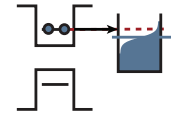


Abbildung 4.13: Der QP ist mit zwei Elektronen besetzt, wovon eins aus dem QP in den Rückkontakt tunneln kann.

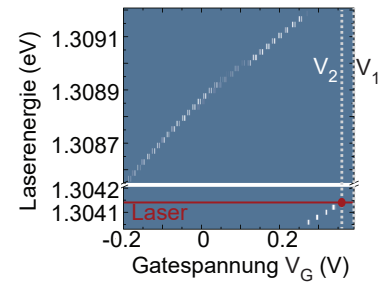


Abbildung 4.14: Gatespannungen und Laserenergie, bei denen das Tunneln eines zweiten Elektrons aus dem QP gemessen wird.

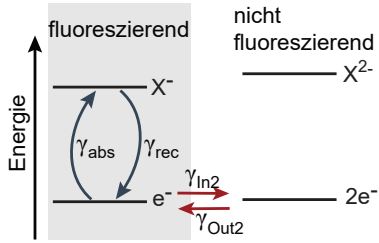


Abbildung 4.15: Energieschema des fluoreszierenden und nicht fluoreszierenden Zustands bei einer Gatespannung um 0.352 V. Die Energie des  $e^-$ -Zustands stimmt mit der Energie des  $2e^-$ -Zustands überein. Die Pfeile zeigen die optischen und Transportprozesse mit ihren jeweiligen Raten  $\gamma$ .

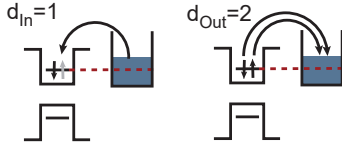


Abbildung 4.16: Tunnelkanäle für das Tunneln eines zweiten Elektrons in den einfach-geladenen QP und für das Tunneln eines Elektrons aus dem zweifach-beladenen QP.

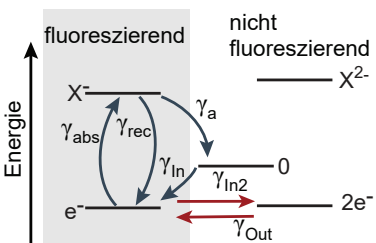


Abbildung 4.18: Energieschema wie in Abbildung 4.15 mit Auger-Rekombination. Es gibt einen zusätzlichen Übergang vom Trion zum leeren QP mit der Auger-Rate  $\gamma_a$ . Der leere QP wird mit der Tunnelrate  $\gamma_{In}$  beladen.

der Rate  $\gamma_{Out2}$  aus dem QP tunneln. Die Ratengleichungen für den fluoreszierenden und nicht-fluoreszierenden Zustand sind gegeben durch

$$\dot{P}_f(t) = -(1-n)\gamma_{In2}P_f(t) + \gamma_{Out2}P_{nf}(t), \quad (4.10)$$

$$\dot{P}_{nf}(t) = -\dot{P}_f(t) \quad (4.11)$$

und werden mit

$$P_f(t) = \frac{(e^{\gamma_m t} - 1)\gamma_{Out}}{\gamma_m} \quad (4.12)$$

und

$$\gamma_m = (n-1)\gamma_{In2} - \gamma_{Out2} \quad (4.13)$$

gelöst. Mit der Zahl der möglichen Tunnelkanäle in den einfach-geladenen QP  $d_{In} = 1$  und aus dem zweifach-geladenen QP  $d_{Out} = 2$  (siehe Abbildung 4.16) und Gleichungen 4.2 und 4.3 ergibt sich eine gatespannungsabhängige Relaxationsrate:

$$\gamma_m = \Gamma(2 + (n-2)f(E)). \quad (4.14)$$

Wenn die Fermi-Verteilung im Rückkontakt von  $f(E) = 0$  zu  $f(E) = 1$  verändert wird, erhält man aus Gleichung 4.14 eine Abnahme von  $\gamma_m$  um einen Faktor 4. Experimentell wird jedoch ein Faktor 60 beobachtet. Dieser Unterschied kann durch eine Auger-Rekombination des Trions erklärt werden, die im folgenden Kapitel untersucht wird.

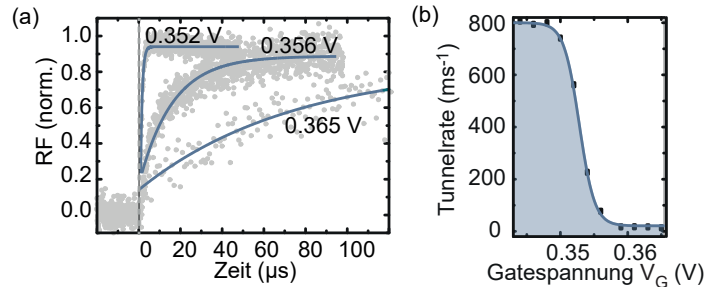


Abbildung 4.17: (a) Zeitaufgelöstes RF-Signal des Übergangs des Trions für unterschiedliche Gatespannungen, wenn ein zweites Elektron aus dem QP tunneln kann. Die blauen Kurven sind eine Anpassung von Gleichung 4.12 an die Messdaten. (b) Die gemessenen Relaxationsraten aufgetragen über die Gatespannung mit einer Anpassung der Fermi-Funktion. Die blaue Kurve ist eine Anpassung mit der Fermi-Funktion und einer Temperatur von  $T = 2$  K

#### 4.7.1 Relaxationsrate mit Auger-Rekombination

Um den Einfluss der Auger-Rekombination (vergl. Kapitel 2.6) auf die Relaxationsrate zu untersuchen, wird die Ratengleichung um die Auger-Rate  $\gamma_a$  und die Tunnelrate in den leeren QP  $\gamma_{In}$  erweitert, siehe Abbildung 4.18. Das Trion kann also zusätzlich zu den Tunnelprozessen in den zweifach-geladenen Zustand auch mit der Auger-Rate in den Grundzustand übergehen. Das Gleichgewicht mit dem Rückkontakt wird erreicht, indem ein Elektron mit der Tunnelrate  $\gamma_{In}$  aus

dem Rückkontakt in den QP tunnelt. Für die Ratengleichungen ergibt sich dann:

$$\dot{P}_f(t) = -\frac{\gamma_{In}}{\gamma_a + \gamma_{In}}\gamma_{In2}P_f(t) + \gamma_{Out}P_{nf}(t), \quad (4.15)$$

$$\dot{P}_{nf}(t) = -\dot{P}_f(t) \quad (4.16)$$

Die Lösung der Differentialgleichung ist gegeben durch

$$P_f(t) = \frac{(e^{-\gamma_m t} - 1)\gamma_{Out}}{\gamma_m} \quad (4.17)$$

mit:

$$\gamma_m = \frac{\gamma_{In}\gamma_{In2}}{\gamma_a + \gamma_{In}} + \gamma_{Out} \approx \gamma_{Out} + \gamma_{In2}\frac{\gamma_{In}}{\gamma_a}. \quad (4.18)$$

Bei den gemessenen Gatespannungen ist  $\gamma_{In} = 2\Gamma$ , weil die Fermi-Funktion im Rückkontakt hier den Wert 1 annimmt. Eine Auger-Rekombination kann nur stattfinden, wenn ein Elektron-Loch-Paar im QP ist. Die Auger-Rate wird entsprechend mit der Wahrscheinlichkeit  $n$  für ein Elektron-Loch-Paar im QP multipliziert  $\gamma_a = \gamma'_a n$ . Auch das Tunneln eines zweiten Elektrons hängt von der Besetzungswahrscheinlichkeit des QPs mit einem Elektron-Loch-Paar ab, da dieser Tunnelprozess nur möglich ist, wenn der QP einfach-beladen ist. Es ergibt sich als Lösung  $\gamma_{In2} = (1 - n)\Gamma f(E)$ . Das Tunneln des zweiten Elektrons aus dem QP ist unabhängig von der Anregungsleistung,  $\gamma_{Out} = 2\Gamma(1 - f(E))$ , ebenso die Tunnelrate in den leeren QP,  $\gamma_{In} = 2\Gamma$ .

Für die Relaxationsrate ergibt sich dann mit  $n = 0.5$ :

$$\gamma_m = 2 \cdot \left( \frac{\Gamma^2}{\gamma'_a} - \Gamma \right) (1 - f(E)) + 2\Gamma. \quad (4.19)$$

Diese Gleichung zeigt bereits, dass der Auger-Prozess die Relaxationsrate in dieser Messung stark beeinflussen kann. Geht die Fermi-Funktion gegen 0 ergibt sich  $\gamma_m = 2\frac{\Gamma^2}{\gamma'_a}$ . Ist die Auger-Rate viel größer als die intrinsische Tunnelrate  $\Gamma$ , kann die Relaxationsrate für hohe Spannungen gegen Null gehen, wie in der Messung in Abbildung 4.17 beobachtet wurde. Mit einer Anpassung (blaue Kurve in Abbildung 4.17(b)) an die Daten erhält man die Tunnelrate  $\gamma_{In} = 2\Gamma = 0.8 \mu\text{s}^{-1}$  und die Auger-Rate  $\gamma_a = 20 \mu\text{s}^{-1}$ .

## 4.8 Tunneln und Auger-Rekombination

Eine weitere Messung am Trion weist auch auf eine Auger-Rekombination im QP hin. Hier wird zunächst die Spannung  $V_2 = 0.32 \text{ V}$  (siehe Abbildung 4.19) angelegt und der QP mit einem Elektron beladen. Nach  $50 \mu\text{s}$  wird die Spannung auf  $V_1$  geändert. Diese Spannung liegt wieder im Übergangsbereich zwischen Exziton und Trion und der QP ist in Resonanz mit dem Laser. Die Messungen wurden bei niedrigen Anregungsleistungen durchgeführt, sodass hier das Tunneln in den exzitonischen Zustand vernachlässigt werden kann. Bei  $V_1 = 0.252 \text{ V}$  in Abbildung 4.20 fällt das RF-Signal des trionischen Übergangs im

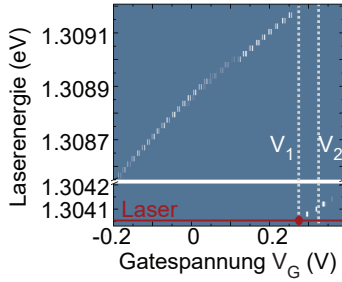


Abbildung 4.19: Gatespannungen und Laserenergie, bei denen das Tunneln eines Elektrons aus dem QP gemessen wurde.

Gleichgewicht auf Null ab. Hier tunnelt das Elektron mit einer Wahrscheinlichkeit von 100 Prozent aus dem QP, der QP ist unbeladen und kann nicht mehr mit der Energie des Trions angeregt werden. Mit steigender Spannung  $V_1$  nimmt die Gleichgewichtsamplitude des RF-Signals zu, weil die Fermi-Verteilung der Ladungsträger im Rückkontakt abgetastet wird.

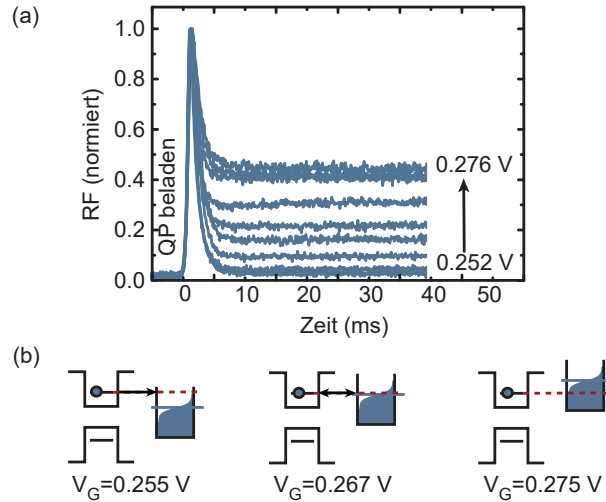


Abbildung 4.20: (a) Zeitaufgelöstes RF-Signal des trionischen Übergangs für unterschiedliche Gatespannungen. Die Gatespannungen liegen im Übergangsbereich zwischen dem Übergang des Exzitons und des Trions. (b) Schematische Darstellung des QP-Niveaus und der Fermi-Energie im Rückkontakt mit den möglichen Tunnelprozessen.

Bei höheren Gatespannungen (z. B.  $V_1 = 0.276 \text{ V}$ ) findet kein Tunneln mehr statt, aber es wird ein Abfall der RF-Intensität des trionischen Übergangs beobachtet. Das RF-Signal sättigt hier bei 0.5, d. h. bei 50 Prozent der Messungen ist im Gleichgewicht kein Elektron mehr im QP, obwohl tunneln aus dem QP energetisch verboten ist. Diese Messung weist somit auch auf eine Auger-Rekombination im QP hin. Ein Gleichgewicht zwischen der Rate der Auger-Rekombination und der Tunnelrate wird, bei  $t = 30 \text{ ms}$ , erreicht. Die Wahrscheinlichkeit für eine Auger-Rekombination entspricht bei  $V_1 = 0.276 \text{ V}$  ungefähr der Tunnelwahrscheinlichkeit, weshalb ein Wert von 0.5 für die Besetzungswahrscheinlichkeit des QPs mit einem Trion im Gleichgewicht gemessen wird.

#### 4.9 Zusammengefasste Ergebnisse

Mit der optischen Detektion von Tunnelprozessen ist es möglich das Tunneln von einzelnen Elektronen in einzelne selbstorganisierte QPe zeitaufgelöst zu beobachten.

- Es wurde eine optische Blockade für das Elektronentunneln in den QP gefunden. Ein Elektron-Loch-Paar im QP beeinflusst die Tunnelrate für das Elektronentunneln in den QP, da es die Zahl der möglichen Tunnelkanäle in den QP von 2 auf (zeitgemittelt) 1.5 reduziert.

- Die Tunnelrate für das Elektronentunneln in den QP ist über die Anregungsleistung (Besetzungswahrscheinlichkeit des QPs mit einem Elektron-Loch-Paar) einstellbar.
- In den Messungen gibt es Hinweise auf eine Auger-Rekombination im QP, die in Kapitel 6 genauer untersucht wird.



# Beobachtung einzelner Quantensprünge

Bis hierhin wurden die Messungen über  $n$ -Aufnahmen<sup>1</sup> gemittelt und das Signal für jede Aufnahme über ein Zeitintervall  $\Delta t$  gemessen. Diese Messmethode ermöglicht es die statistischen Eigenschaften<sup>2</sup> eines Systems zu untersuchen, es ist jedoch nicht möglich, die Antwort des Systems in Echtzeit abzufragen.

Im Folgenden soll mit Hilfe der resonanten Fluoreszenz die Elektronendynamik zwischen dem Grundzustand (s-Schale) und dem Rückkontakt in Echtzeit gemessen werden. Dieses ermöglicht es erstmals das Tunneln eines einzelnen Elektrons in einen selbstorganisierten Quantenpunkt zu beobachten.

## 5.1 Statistische Messung und Quantensprünge

Bei dieser Messung kann zu jedem Zeitpunkt gemessen werden, ob sich das Elektron im QP oder im Reservoir befindet. In einer solchen Messung wird durch eine geeignete Gatespannung das System Quantenpunkt+Reservoir durch die Tunnelkopplung in einen quantenmechanischen Überlagerungszustand

$$\Psi = a\Psi_a + b\Psi_b \quad (5.1)$$

gebracht. Die optische Messung mittels RF projiziert den Zustand dann auf einen Eigenzustand (Elektron im QP oder im Reservoir). Durch die Diskretheit der Ladungen kommt es zu einer zeitlichen Verteilung der Tunnelereignisse in einem Strom durch einen QP, siehe Abbildung 5.1(b). Das gemessene Signal wird auch als Telegraphenrauschen<sup>3</sup> bezeichnet.<sup>4</sup> Hierdurch erhält man mehr Informationen über den Tunnelprozess und kann Korrelationen und Wechselwirkungen im Detail untersuchen.

Die gemittelte Messung beobachtet hingegen die Relaxation des Systems QP-Reservoir ins Gleichgewicht, siehe Abbildung 5.1(a). Hierbei sind die einzelnen Quantensprünge zwar immer noch vorhanden, werden aber statistisch herausgemittelt und die Anzahl der Projektionen für eine  $n$ -Aufnahmen-Messung auf den Eigenzustand "Elektron im QP" oder "Elektron im Reservoir" ergibt die RF-Amplitude im Gleichgewicht (vgl. Kapitel 4). Bei der Messung mit  $n$ -Aufnahmen ist es möglich eine hohe Zeitauflösung und ein gutes Signal-zu-Rausch Verhältnis zu erreichen, indem die Anzahl der

<sup>1</sup> Englisch: n-shot

<sup>2</sup> Es kann nur gemessen werden, mit welcher Wahrscheinlichkeit das Elektron im QP bzw. im Reservoir ist.

<sup>3</sup> englisch: Random telegraph noise

<sup>4</sup> Die Analyse des Telegraphenrauschens wird in Kapitel 5.4 genauer erklärt.

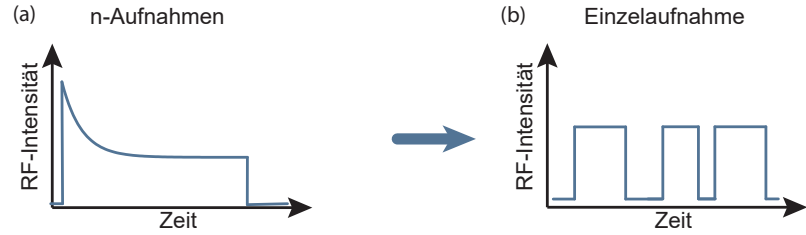


Abbildung 5.1: (a) Bei einer Messung mit  $n$ -Aufnahmen werden die statistischen Eigenschaften eines Systems untersucht. (b) Messung des Telegraphenrauschens, es enthält alle Informationen über den Tunnelprozess.

Einzelmessungen  $n$  gesteigert wird. In einer Einzelaufnahme ist dies nicht möglich, d.h. wenn man die Zeitauflösung erhöht, verschlechtert sich gleichzeitig das Signal-zu-Rausch Verhältnis, da über eine kleinere Zeit integriert wird. Das RF-Signal des QPs ist aufgrund von Spin- und Ladungsfluktuationen instabil.<sup>5,6</sup> Wegen dieser Fluktuationen der RF-Intensität konnte in dieser Arbeit nur eine Zeitauflösung von einer Millisekunde erreicht werden, in der gleichen Größenordnung liegt auch die Tunnelrate zwischen dem QP und dem Reservoir der für diese Arbeit verwendeten Probe.<sup>7</sup>

<sup>5</sup> Matthiesen, C. *et al.*, *Sci. Rep.* **4** (2014)

<sup>6</sup> Kuhlmann, A. V. *et al.*, *Nat. Phys.* **9** (2013)

<sup>7</sup> Probe BO14560 (siehe Kapitel 3.1)

## 5.2 Telegraphenrauschen

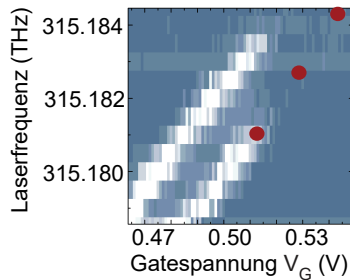


Abbildung 5.2: Gatespannung und Laserenergie, bei denen das Tunneln von Elektronen zwischen Reservoir und QP beobachtet wird. Die roten Punkte markieren die Gatespannungen und Laserfrequenzen, die für die Messungen in Abbildung 5.4 eingestellt werden.

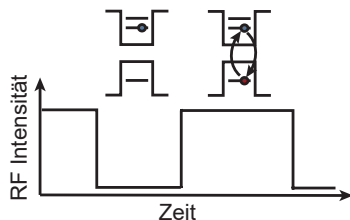


Abbildung 5.3: Zeitaufgelöste RF-Intensität des Exzitons. Das RF-Signal ist aus, wenn ein Elektron in den QP getunnelt ist und man beobachtet ein Telegraphenrauschen.

Eine RF-Übersicht des exzitonischen Übergangs in Abhängigkeit von der Anregungsfrequenz und der Gatespannung ist in Abbildung 5.2 zu sehen. Im Gatespannungsbereich zwischen 0.5 und 0.53 V tunnelt ein Elektron in den QP und das Exziton kann nicht mehr angeregt werden. In diesem Bereich werden im Folgenden einzelne Tunnelprozesse gemessen, hierfür kann das RF-Signal des exzitonischen Übergangs mit einer Zeitauflösung von 1 ms bei einer konstanten Gatespannung und Laserfrequenz aufgezeichnet werden. Ist der QP unbeladen, wird das Exziton angeregt und ein RF-Signal beobachtet, siehe Abbildung 5.3. Sobald ein Elektron in den QP tunnelt, verschwindet das RF-Signal des Exzitons.

In Abbildung 5.4 sind Ausschnitte aus RF-Zeitreihen mit einer Länge von etwa 100 ms für drei unterschiedliche Gatespannungen zu sehen. Die gesamten Zeitreihen haben eine Länge von etwa 40 s. Bei der Gatespannung  $V_G = 0.5136$  V ist die Fermi-Energie im Rückkontakt unter dem ersten Niveau im QP und die Wahrscheinlichkeit, dass ein Elektron in den QP tunnelt, ist gering. In der zeitaufgelösten Messung in Abbildung 5.4(a) wird die meiste Zeit ein RF-Signal beobachtet. Dieser Zeitintervalle sind grau hinterlegt, hier ist der QP unbeladen.

Die Zeiten, in denen ein Elektron im QP oder im Rückkontakt ist, sollen in diesem Kapitel genauer untersucht werden. Hierfür muss zunächst festgelegt werden, ab welcher RF-Intensität ein RF-Signal des QPs beobachtet wird und der QP unbeladen ist. Dazu werden im Folgenden Histogramme der RF-Intensität erstellt, d.h. es wird ausgewertet, wie oft eine RF-Intensität in den einzelnen Zeitspuren vorkommt. Die Anzahl der verschiedenen RF-Intensitäten wird dann



über die RF-Intensität aufgetragen.

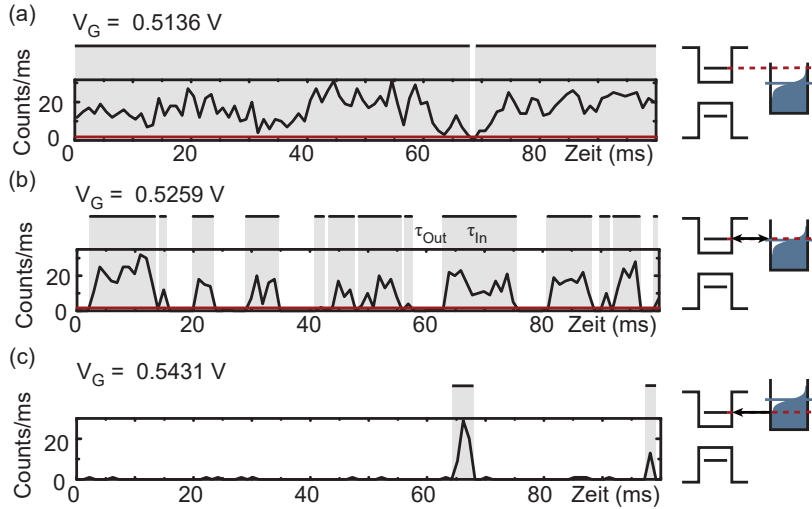


Abbildung 5.4: Telegraphenrauschen für drei unterschiedliche Gatespannungen im Übergangsbereich zwischen Exziton und Trion. Die Zeitintervalle, in denen der QP unbeladen ist und ein RF-Signal beobachtet wird, sind grau hinterlegt. Die schematischen Abbildungen zeigen die Lage der Fermi-Energie im Rückkontakt im Verhältnis zum untersten Niveau im QP. Die rote Linie markiert die Grenze zwischen dem An- und Aus-Zustand des QPs.

In Abbildung 5.5 ist ein Beispiel-Histogramm für eine Gatespannung  $V_G = 0.5136 \text{ V}$  dargestellt. Zwei getrennte Verteilungsfunktionen für den Hintergrund und die Emission des QPs werden beobachtet. Das Signal unterhalb von 3 Photonen/ms ist der Hintergrund der Messung, der durch den Laser verursacht wird. Dieser Untergrund rauscht um 2 Photonen/ms für das gegebene Messintervall von 40 s. Oberhalb von 3 Photonen/ms wird eine breite Verteilung der Photonen gemessen, weil der QP mit einer Standardabweichung von 15 Photonen/ms rauscht. Die Statistik des QPs ist stark von der Verstimmung zwischen Laser und QP abhängig, wodurch unterschiedliche Formen in der Photonenverteilung gemessen werden, siehe auch Matthiesen et al.<sup>8</sup>. Entsprechend kann eine Grenze bei 3 Photonen/ms festgelegt werden, siehe rote Linie in Abbildung 5.4. Ist die gemessene RF-Intensität höher als 3 Photonen/ms, ist der QP an und unbeladen. Ist die gemessene RF-Intensität kleiner als 3 Photonen/ms, wird nur der Hintergrund gemessen und der QP ist mit einem Elektron beladen.

Mit dieser Analyse des Untergrundrauschens können die Zeitspuren in Abbildung 5.4 ausgewertet werden. In Abbildung 5.4(a) wird bei etwa 68 ms eine Intensität gemessen, die diese Grenze unterschreitet, d. h. der QP ist im Aus-Zustand, weil ein Elektron in den QP getunnelt ist.

Bei einer etwas höheren Gatespannung  $V_G = 0.5259 \text{ V}$  (Abbildung 5.4(b)) ist in der RF-Übersicht in Abbildung 5.2 nur ein schwaches RF-Signal des Exzitons zu sehen, weil ein Elektron zwischen Rückkontakt und QP hin- und hertunneln kann. Das s-Niveau des QPs ist in Resonanz mit dem chemischen Potenzial im Rückkontakt, d. h. hier nimmt die Fermi-Verteilung der Besetzung des Rückkon-

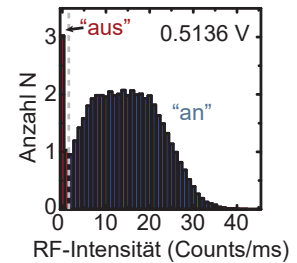


Abbildung 5.5: Histogramm der RF-Intensität für die Gatespannung  $V_G = 0.5136 \text{ V}$ .

<sup>8</sup> Matthiesen, C. et al., *Sci. Rep.* **4** (2014)

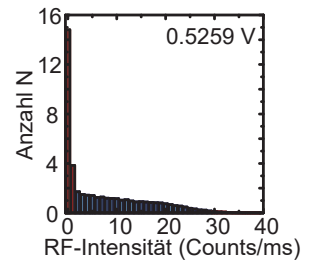


Abbildung 5.6: Histogramm der RF-Intensität für die Gatespannung  $V_G = 0.5259 \text{ V}$ .

takts den Wert 0.5 an. Die Wahrscheinlichkeit für ein Elektron im QP entspricht bei dieser Gatespannung der Wahrscheinlichkeit für einen unbeladenen QP. In Abbildung 5.4(b) sind Bereiche zu sehen, in denen ein RF Signal des Exzitons gemessen wird (grau hinterlegt) und Bereiche, in denen das Exziton keine Photonen emittiert (weiß hinterlegt). Bei jedem Übergang von einem grauen zu einem weißen Bereich tunnelt ein Elektron in den QP. Bei jedem Übergang von einem weißen zu einem grauen Bereich tunnelt ein Elektron aus dem QP.

Das Histogramm mit den Häufigkeiten der unterschiedlichen Photonenzahlen bei der Gatespannung  $V_G = 0.5259 \text{ V}$  ist in Abbildung 5.6 gezeigt. Es werden mit hoher Wahrscheinlichkeit 0 und 1 Photon pro Millisekunde gemessen. Die Verteilung für die Anzahl der Photonen des QP-Übergangs ist deutlich weniger ausgeprägt als in Abbildung 5.5. Außerdem ist kein Minimum zwischen den Verteilungen des Hintergrunds und des QP-Übergangs erkennbar. Die Grenze für den An- und Aus-Zustand wird bei 3 Photonen pro Millisekunde gesetzt, weil ab 3 Photonen pro Millisekunde die Verteilung der Photonen des Hintergrunds verschwindet. Die deutlich schwächere Verteilung der RF-Intensität des QP-Übergangs in Abbildung 5.6 kann durch die reduzierte Wahrscheinlichkeit für ein RF-Signal des QPs erklärt werden.

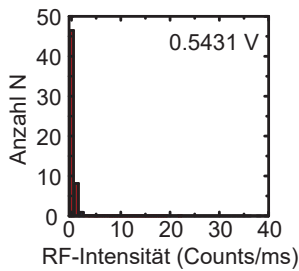


Abbildung 5.7: Histogramm der RF-Intensität für die Gatespannung  $V_G = 0.5431 \text{ V}$ .

In Abbildung 5.4(c) ist die Gatespannung ( $V_G = 0.5431 \text{ V}$ ) so hoch, dass die Fermi-Energie im Rückkontakt oberhalb des ersten Niveaus im QP liegt und mit einer hohen Wahrscheinlichkeit ein Elektron im QP ist. Das Exziton wird nur selten beobachtet (Abbildung 5.7), weil die Wahrscheinlichkeit für das Tunneln eines Elektrons aus dem QP gering ist.

Für die folgende Auswertung wird immer eine Grenze bei 3 Photonen/ms verwendet, d.h. wenn weniger als 3 Photonen/ms gemessen werden, ist das RF-Signal des QPs aus und ein Elektron befindet sich im QP. Werden 3 Photonen/ms oder mehr gemessen, ist das RF-Signal des QPs an und es ist kein Elektron im QP.

### 5.3 Tunnelraten

Aus den Zeitreihen des RF-Signals in Abbildung 5.4 können die Tunnelraten für das Elektronentunneln zwischen QP und Rückkontakt bestimmt werden. Die Zeitintervalle, in denen sich das Elektron im QP befindet, sind in Abbildung 5.4 weiß markiert und entsprechen den Tunnelzeiten  $\tau_{Out}$  von Elektronen aus dem QP. Die Zeitintervalle, in denen der QP unbeladen ist, sind grau hinterlegt. Sie entsprechen den Tunnelzeiten  $\tau_{In}$  von Elektronen in den QP. Um die Tunnelraten zu bestimmen, werden in einer Zeitspur zunächst die Längen  $\tau_{in}$  und  $\tau_{out}$  aller Zeitintervalle bestimmt, in denen das RF-Signal des QPs an bzw. aus ist. Danach wird gezählt, wie häufig eine bestimmte Zeit für  $\tau_{in}$  oder  $\tau_{out}$  gemessen wird, und die Häufigkeiten  $N$  der Zeiten  $\tau_{Out}$  und  $\tau_{In}$  in Abbildung 5.8 über die Zeit aufgetragen. Sie können mit einer Exponentialfunktion angepasst werden, wobei die erwartete Zeit für den Tunnelprozess eines Elektrons in den QP oder aus dem QP

durch<sup>9</sup>

$$p_{In/Out}dt = \gamma_{In/Out}e^{-\gamma_{In/Out}t}dt \quad (5.2)$$

<sup>9</sup> Gustavsson, S. et al., *Physica E* 40 (2007)

gegeben ist. Und somit können mit der Anpassung direkt die Tunnelraten zwischen QP und Rückkontakt bestimmt werden.

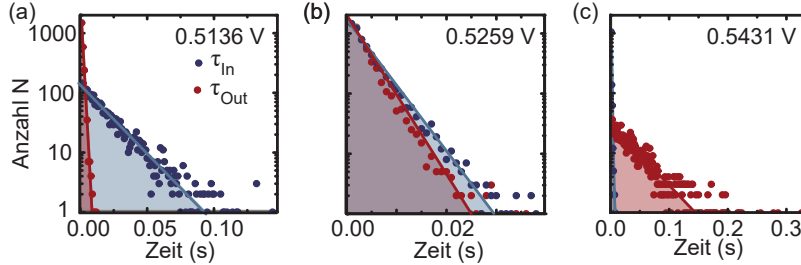


Abbildung 5.8: Anzahl  $N$  der unterschiedlichen An- und Aus-Zeiten ( $\tau_{In}$  und  $\tau_{Out}$ ) aus den Zeitreihen in Abbildung 5.4 für unterschiedlichen Gatespannungen. Durch exponentielle Anpassungen an die Messdaten (blaue und rote Kurven) können die Tunnelraten für das Tunneln in  $\gamma_{In}$  und aus  $\gamma_{Out}$  dem QP bestimmt werden.

Die Anzahl der unterschiedlichen Zeiten, in denen der QP beladen bzw. unbeladen ist, sind in Abbildung 5.8 für drei unterschiedliche Gatespannungen dargestellt. Bei einer Gatespannung von 0.5136 V (Abbildung 5.8(a)) ist das chemische Potential im Rückkontakt unterhalb der s-Schale des QPs. Das Elektronentunneln aus dem QP ins Reservoir ist damit mit hoher Wahrscheinlichkeit möglich und entsprechend werden sehr kurze Zeiten für  $\tau_{out}$  gemessen (rote Punkte). Analog ist das Elektronentunneln in den QP unterdrückt und es werden deutlich längere Zeiten bis 100 ms für  $\tau_{in}$  gemessen (blaue Punkte). Durch Anpassungen mit Exponentialfunktionen können die Tunnelraten für das Tunneln in den QP aus den blauen Messdaten und die Tunnelraten für das Tunneln aus dem QP aus den roten Messdaten bestimmt werden. Bei höheren Gatespannungen gleichen sich die Tunnelraten an (Abbildung 5.8(b)) und wenn das chemische Potential im Rückkontakt über dem ersten Niveau im QP liegt, werden lange Aus-Zeiten bis zu 150 ms und kurze An-Zeiten bis zu 10 ms des QPs beobachtet, siehe Abbildung 5.8(c).

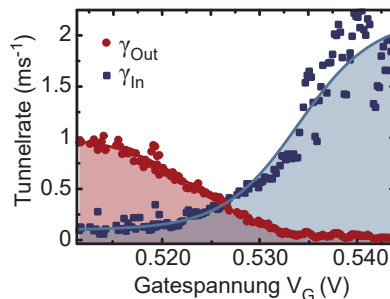


Abbildung 5.9: Tunnelraten für das Tunneln in den QP  $\gamma_{In}$  und aus dem QP  $\gamma_{Out}$  für verschiedene Gatespannungen im Übergangsbereich zwischen exzitonischem und trionischem Übergang. Die Kurven sind Anpassungen an die Messdaten mit Fermi-Funktionen und einer Temperatur von  $(8 \pm 4)$  K.

Die Raten für das Elektronentunneln in und aus dem QP sind in Abbildung 5.9 für unterschiedliche Gatespannungen dargestellt. Sie

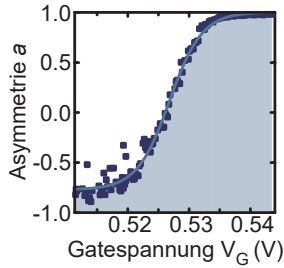


Abbildung 5.10: Asymmetrie zwischen den Tunnelraten für das Tunneln in und aus dem QP für verschiedene Gatespannungen.

entsprechen dem erwarteten Verlauf für Tunnelraten ohne ein Exziton, wie in Kapitel 4.4 beschreiben. Die Messungen wurden bei einer geringen Anregungsleistung durchgeführt, bei der die Wahrscheinlichkeit für ein Exziton im QP etwa 0.1 ist, sodass die optische Blockade vernachlässigt werden kann. Die Tunnelrate für das Tunneln eines Elektrons aus dem QP nimmt mit steigender Gatespannung ab, weil das Fermi-Niveau im Rückkontakt im Verhältnis zum s-Niveau des QPs energetisch angehoben wird. Gleichzeitig nimmt die Rate für das Tunneln in den QP zu, weil bei dieser Energie mehr Elektronen im Rückkontakt zu Verfügung stehen, die in den QP tunneln können. Die beiden Tunnelraten in Abhängigkeit von der Gatespannung können mit einer Fermi-Funktion mit  $T = (8 \pm 4)$  K angepasst werden. Für die intrinsische Tunnelrate  $\Gamma$  ergibt sich  $\Gamma \approx 1 \text{ ms}^{-1}$ . Diese Auswertung zeigt, dass trotz des verrauschten RF-Signals eine Auswertung der Messung möglich ist und zu guten Ergebnissen führt.

Aus den Tunnelraten kann die Asymmetrie

$$a = \frac{\gamma_{In} - \gamma_{Out}}{\gamma_{In} + \gamma_{Out}} \quad (5.3)$$

zwischen den Tunnelraten bestimmt werden, welche im folgenden Kapitel für die Zählstatistik benötigt wird. Sie ist in Abbildung 5.10 in Abhängigkeit von der Gatespannung dargestellt. Bei Gatespannungen unterhalb von 0.52 V geht die Asymmetrie gegen  $-0.8$ . Hier ist die Tunnelrate für das Elektronentunneln aus dem QP viel größer als die Tunnelrate für das Elektronentunneln in den QP. Mit steigender Gatespannung nimmt die Asymmetrie ab, bis sie bei einer Gatespannung von  $V_G = 0.527 \text{ V}$  den Wert 0 annimmt. Bei dieser Gatespannung entspricht die Tunnelrate für das Tunneln in den QP der Tunnelrate für das Tunneln aus dem QP. Ab dieser Gatespannung nimmt die Asymmetrie wieder zu, da die Tunnelrate für das Tunneln in den QP zunimmt und die Tunnelrate für das Tunneln aus dem QP abnimmt.



Abbildung 5.11: Elektronen in einem (a) idealen und einem (b) realen Strom.

#### 5.4 Optische Zählstatistik

Mit der optischen Zählstatistik wird im Folgenden der Elektronenstrom in und aus dem QP näher betrachtet. Durch die Diskretheit der Ladungen kommt es zu einer zeitlichen Verteilung der Tunnelereignisse in einem Strom in und aus einem QP. In einem idealen Stromfluss sind die Zeitintervalle  $\Delta t$  zwischen zwei Tunnelereignissen konstant (Abbildung 5.11(a)) und der Strom ist durch

$$I = \frac{e}{\Delta t} \quad (5.4)$$

gegeben. Bei einem realistischen Strom schwankt das Zeitintervall  $\Delta t$  zwischen zwei Tunnelereignissen (Abbildung 5.11(b)), dennoch ergibt sich mit einer gemittelten Zeit  $\delta t$  der gleiche Strom. Ein Unterschied im Strom wird erst sichtbar, wenn man sich die Verteilungsfunktion  $P_N$  der Anzahl der Elektronen, die in einem bestimmten Zeitintervall  $t_0$  in den QP getunnelt sind, betrachtet. Hierfür wird

die Zeitspur der Länge  $T$  in  $m = T/t_0$  Intervalle der Länge  $t_0$  unterteilt und die Anzahl der Tunnelereignisse  $N$  in diesem Intervall gezählt. Die Zeitspuren die hier ausgewertet wurden haben die Länge  $T = 40$  s und werden in Intervalle der Länge  $t_0 = 20$  ms eingeteilt. Die Wahrscheinlichkeit für eine bestimmte Anzahl an Tunnelereignissen im Zeitintervall  $t_0$  wird über die Anzahl  $N$  der Tunnelereignisse aufgetragen. Für einen idealen Strom erhält man in einem Balkendiagramm nur einen Balken bei einer bestimmten Anzahl von Elektronen (mit  $\Delta t > t_0$ ). In jedem Zeitintervall werden gleich viele Tunnelereignisse gezählt, sodass die Wahrscheinlichkeit für diese Zahl 1 ist. In Abbildung 5.12(a) ist diese Verteilung für 5 Tunnelereignisse gezeigt. Bei einem realistischen Elektronenstrom durch eine Barriere wird eine Poisson-Verteilung mit<sup>10</sup>

$$P(N) = \frac{\lambda^N}{N!} e^{-\lambda} \quad (5.5)$$

gemessen, wie in Abbildung 5.12(b) dargestellt. Hier ist  $N$  die Zahl der Tunnelereignisse und  $\lambda$  die mittlere Anzahl der Tunnelereignisse. Bei einer Poisson-Verteilung entspricht der Mittelwert  $\lambda$  der Varianz  $\sigma^2$ , d. h.  $\sigma^2 = \lambda$ .

Um die Verteilung der Tunnelereignisse zu charakterisieren, können die zentralen Momente und Kumulanten berechnet werden. Sie sind wichtige Kenngrößen der Verteilung. Die Momente sind durch die momenterzeugende Funktion definiert:<sup>11,12</sup>

$$\mathcal{M}(z, t_0) = \sum_N e^{Nz} P_N(t_0). \quad (5.6)$$

Aus dieser Funktion lassen sich die Momente der Verteilung mit

$$M^m(t_0) := \langle N^m \rangle(t_0) = \partial z^m \mathcal{M}(z, t_0) |_{z=0} \quad (5.7)$$

und die Kumulanten mit

$$C^m(t) := \langle \langle N^m \rangle \rangle(t_0) = \partial z^m \ln \mathcal{M}(z, t_0) |_{z=0} \quad (5.8)$$

berechnen.  $\langle \langle N \rangle \rangle$  steht über die Rekursionsrelation im Verhältnis zu  $\langle N \rangle$ :

$$\langle \langle N^m \rangle \rangle(t_0) = \langle N^m \rangle(t_0) - \sum_{j=1}^{m-1} \binom{m-1}{j-1} \langle \langle N^j \rangle \rangle(t_0) \langle N^{m-j} \rangle(t_0). \quad (5.9)$$

Das erste Moment  $m = 1$  gibt den Mittelwert der getunnelten Elektronen an und kann mit den Gleichungen 5.6 und 5.7 berechnet werden

$$M^1(t_0) := \langle N^1 \rangle(t_0) = \sum_N N P_N(t_0), \quad (5.10)$$

es entspricht der ersten Kumulanten  $C^1$ . Mit Gleichung 5.10 kann direkt aus den Verteilungen  $P_N$  das erste Moment und die erste Kumulante für das Tunneln zwischen QP und Rückkontakt bestimmt werden.

<sup>10</sup> Gustavsson, S. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **96** (2006)

<sup>11</sup> Cornish, E. A. *et al.*, *Revue de l'Inst. intern. de Stat.* **5** (1938)

<sup>12</sup> Bagrets, D. A. *et al.*, *Fortschr. Phys.* **54** (2006)

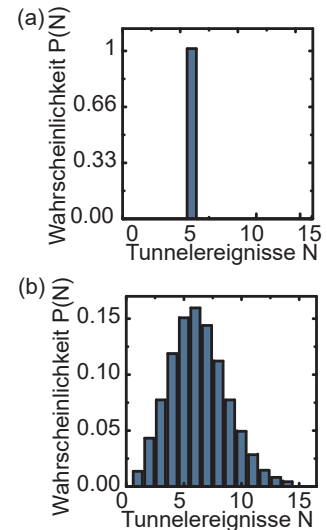


Abbildung 5.12: Wahrscheinlichkeit  $P(N)$  für eine bestimmte Anzahl an Tunnelereignissen  $N$  (a) für einen idealen Strom und (b) für einen realen Strom.

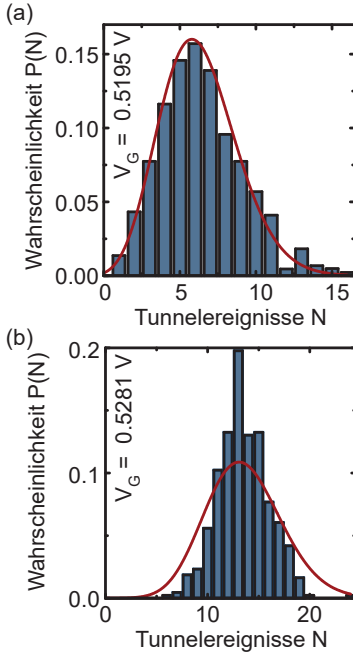


Abbildung 5.13: Wahrscheinlichkeiten für eine bestimmte Anzahl an Tunnelereignissen in einem Zeitintervall  $t_0 = 100$  ms für zwei unterschiedliche Gatespannungen. Die Poisson-Verteilungen ist rot eingezeichnet. (a) Die gemessene Verteilung entspricht einer Poisson-Verteilung. (b) Die gemessene Verteilung ist schmaler als eine Poisson-Verteilung.

<sup>13</sup> Belzig, W., *Phys. Rev. B* **71** (2005)

<sup>14</sup> Barthold, P. et al., *Phys. Rev. Lett.* **96** (2006)

<sup>15</sup> Gustavsson, S. et al., *Phys. Rev. B* **74** (2006)

<sup>16</sup> Blanter, Y. M. et al., *Phys. Rev. B* **59** (1999)

<sup>17</sup> Birk, H. et al., *Phys. Rev. Lett.* **75** (1995)

<sup>18</sup> Gustavsson, S. et al., *Phys. Rev. Lett.* **96** (2006)

<sup>19</sup> Beenakker, C. W. J. et al., *Phys. Rev. B* **46** (1992)

<sup>20</sup> Blanter, Y. M. et al., *Phys. Rep.* **336** (2000)

Das zweite Moment  $m = 2$  der Verteilung ist durch die Varianz der Verteilung gegeben und ist ein Maß für die Stärke der mittleren Schwankung des Telegraphenrauschens, es ergibt sich

$$M^2(t_0) := \langle N^2 \rangle(t_0) = \sum_N N^2 P_N(t_0) \quad (5.11)$$

und für die zweite Kumulante mit Gleichung 5.9:

$$C^2(t_0) := \langle \langle N^2 \rangle \rangle(t_0) = \langle N^2 \rangle(t_0) - \langle N^1 \rangle(t_0)^2. \quad (5.12)$$

Somit kann auch die zweite Kumulante direkt aus der Messung bestimmt werden. Das Rauschen eines Stroms wird auch durch den Fano-Faktor beschrieben, er wird aus der Breite der Verteilung und dem Mittelwert berechnet.

### 5.5 Fano-Faktor

Es ergibt sich mit der ersten und zweiten Kumulante für den Fano-Faktor:<sup>13</sup>

$$F = \frac{\langle \langle N^2 \rangle \rangle}{\langle N^1 \rangle} = \frac{C^2}{C^1}. \quad (5.13)$$

Für Prozesse, die durch eine Poisson-Verteilung beschrieben werden (z. B. das Tunneln eines Elektrons durch eine Barriere) ist der Fano-Faktor  $F = 1$ . Der Fano-Faktor kann auch größer als 1 werden, die Verteilung wird dann Super-Poisson<sup>14,15</sup> genannt und der Elektronentransport streut mehr um den Mittelwert und ist weniger regelmäßig. Bei einer Sub-Poisson-Verteilung ist der Mittelwert der Verteilung größer als die Breite, d. h.  $F < 1$ . Hier ist das Rauschen schwächer als bei einer Poisson-Verteilung und der Elektronentransport ist regelmäßiger.

Zwei Wahrscheinlichkeitsverteilungen der Tunnelprozesse bei den Gatespannungen  $V_G = 0.5195$  V und  $V_G = 0.5281$  V sind in Abbildung 5.13(a) und (b) dargestellt. Die Tunnelereignisse wurden in den Zeitspuren gezählt und die Wahrscheinlichkeit für eine bestimmte Anzahl an Tunnelprozessen über die Anzahl aufgetragen. Die roten Linien sind jeweils Poisson-Verteilungen um den Mittelwert der Messungen. Die Messung bei einer Gatespannung von  $V_G = 0.5195$  V entspricht sehr gut einer Poisson-Verteilung mit dem Fano-Faktor  $F = 1$ . Die Verteilung bei  $V_G = 0.5281$  V ist hingegen deutlich schmaler, d. h. der Fano-Faktor ist hier kleiner als 1. Eine Auswertung ergibt  $F \approx 0.5$ .

Der Fano-Faktor wird für alle Zeitreihen mit unterschiedlichen Gatespannungen bestimmt und über die Asymmetrie  $a$  aufgetragen (Abbildung 5.14). Für asymmetrische Tunnelraten  $|a| \approx 1$  ist der Fano-Faktor  $\approx 1$ ,<sup>16</sup> es wird also eine Poisson-Verteilung beobachtet, wie für das Tunneln durch eine einzelne Barriere erwartet wird.<sup>17</sup> Für symmetrische Tunnelraten ist der Fano-Faktor 0.5, die Reduzierung des Rauschens wird durch die Coulomb-Blockade zwischen den Elektronen verursacht.<sup>18,19,20</sup> Wenn ein Elektron im QP ist kann ein zweites Elektron erst in den QP tunneln nachdem das erste Elektron

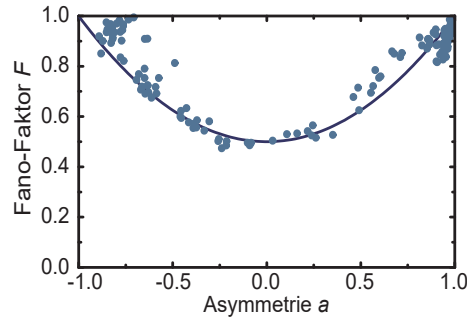


Abbildung 5.14: Fano-Faktor für verschiedene Asymmetrien zwischen den Tunnelraten für das Elektronentunneln in und aus dem QP. Bei ähnlichen Tunnelraten wird ein Fano-Faktor von 0.5 gemessen und bei stark unterschiedlichen Tunnelraten ein Fano-Faktor von 1.

den QP wieder verlassen hat, was zu einer Korrelation in den Tunnelprozessen und einem reduzierten Rauschen führt. Der Fano-Faktor in Abhängigkeit von der Asymmetrie wird durch<sup>21,22</sup>

$$F = \frac{1}{2}(1 + a^2) \quad (5.14)$$

beschrieben und ist als blaue Linie in Abbildung 5.14 dargestellt. Die Messdaten stimmen sehr gut mit der erwarteten Abhängigkeit überein.

<sup>21</sup> Gustavsson, S. *et al.*, *Physica E* **40** (2007)

<sup>22</sup> Bagrets, D. A. *et al.*, *Phys. Rev. B* **67** (2003)

## 5.6 Kumulanten höherer Ordnung

Nun werden auch die höheren Kumulanten der Messung betrachtet, welche mit Hilfe der Gleichungen 5.7 und 5.9 berechnet werden können. Die dritte Kumulante gibt die Asymmetrie der Verteilung an und die vierte die Kurtosis. Die Kurtosis ist die Steilheit oder Spitzheit der Funktion.

Die Zeitreihen wurden in Abschnitt 5.4 in Zeitspuren mit einer Länge von  $t_0 = 20$  ms eingeteilt, diese Zeit kann jedoch geändert werden. Wie sich eine Veränderung der Zeit  $t_0$  auf die unterschiedlichen Kumulanten auswirkt ist in Abbildung 5.15 zu sehen; hier sind die normierten Kumulanten zweiter bis vierter Ordnung in Abhängigkeit von  $t_0$  dargestellt.

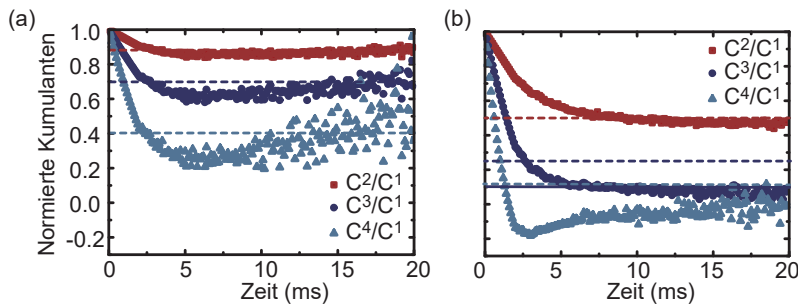


Abbildung 5.15: Normierte Kumulanten für unterschiedliche Längen der Zeitspuren  $t_0$  (a) bei der Asymmetrie  $a = -0.88$  und (b)  $a = -0.14$ . Die theoretisch berechneten normierten Kumulanten sind als gestrichelte Linien eingezeichnet.

Bei der Gatespannung  $V_G = 0.5136$  V ist die Asymmetrie zwischen den Barrieren  $a = -0.88$ , d.h. die Raten für das Tunneln in den QP



und aus dem QP unterscheiden sich stark. Alle Kumulanten nehmen hier bei  $t_0 = 0$  den Wert 1 an, weil die Verteilung der Tunnelereignisse nur noch die Werte 0 und 1 annehmen kann, damit entsprechen sie einer Bernoulli-Verteilung. Bei längeren Zeiten fallen die Werte der Kumulanten ab und werden bei  $t_0 \approx 20$  ms konstant. Der Wert für lange Zeiten  $t_0$  kann theoretisch berechnet werden, wenn  $t_0 \gg 1/\Gamma$  gilt. Die Abhängigkeit der zweiten Kumulante von der Asymmetrie ist durch Gleichung 5.14 gegeben.<sup>23</sup> Für die dritte Kumulante gilt

$$\frac{C^3}{C^1} = \frac{1 + 3a^4}{4} \quad (5.15)$$

und für die vierte Kumulante

$$\frac{C^4}{C^1} = \frac{1 + a^2 - 9a^4 + 15a^6}{8}. \quad (5.16)$$

Hiermit ergeben sich die in Abbildung 5.15 als gestrichelte Linie eingezeichneten Werte. Die Kumulanten streben in Abbildung 5.15(a) alle die berechneten Werte an, d. h. für eine große Asymmetrie zwischen den beiden Tunnelraten stimmen die gemessenen Kumulanten gut mit der Theorie überein.

Bei einer kleineren Asymmetrie  $a = -0.14$  ( $V_G = 0.5259$  V) nehmen alle Kumulanten für kurze Zeitspuren den Wert 1 an. Bei größeren Zeiten nähert sich die zweite normierte Kumulante (rot) dem berechneten Wert an. Die Messwerte der normierten dritten (dunkelblau) und vierten (hellblau) Kumulanten fallen jedoch unter den erwarteten Wert. Diese Abweichung kann durch die Bandbreite des Detektors erklärt werden. In der Messung gibt es nie eine unendliche Bandbreite des Detektor und keine unendlich lange Messdauer. Die endliche Bandbreite des Detektors führt zu einer Unterschätzung der Raten, da die Messdaten mit kurzen Zeiten abgeschnitten werden, und somit die Messdaten von langen Zeiten ein höheres Gewicht bekommen.

Der Einfluss der endlichen Bandbreite des Detektors auf die volle Zählstatistik kann mit Ratengleichungen berechnet werden.<sup>24,25</sup> Mit der relativen Bandbreite  $k = \gamma_{Det}/(\gamma_{In} + \gamma_{Out})$  ergibt sich für die zweite normierte Kumulante der Wert, der in Abbildung 5.15(b) als dunkelblaue durchgezogene Linie dargestellt ist.<sup>26</sup> Mit dieser Korrektur liegt der berechnete Wert der Kumulanten deutlich näher an den Messwerten. Außerdem kann mit diesem Fehler erklärt werden, warum die Kumulanten bei einer großen Asymmetrie zwischen den Tunnelraten für das Herein- und Heraustunneln gut mit den berechneten Werten übereinstimmen und bei den Messungen mit einer kleinen Asymmetrie in Abbildung 5.15 stark von den theoretischen Erwartungen abweichen.

In Abbildung 5.16 sind die zweite und dritte normierte Kumulante in Abhängigkeit von der relativen Detektorbandbreite für zwei unterschiedliche Asymmetrien dargestellt. Die normierten Kumulanten haben bei  $k = 1$  ein Minimum, da bei dieser Detektorbandbreite die Messung am stärksten durch den Detektor beeinflusst wird. Für eine große Asymmetrie  $a = -0.88$  ändern sich die Kumulanten nur um

<sup>23</sup> Gustavsson, S. et al., *Surf. Sci. Rep.* **64** (2009)

<sup>24</sup> Naaman, O. et al., *Phys. Rev. Lett.* **96** (2006)

<sup>25</sup> Gustavsson, S. et al., *Phys. Rev. B* **75** (2007)

<sup>26</sup> Gustavsson, S. et al., *Surf. Sci. Rep.* **64** (2009)



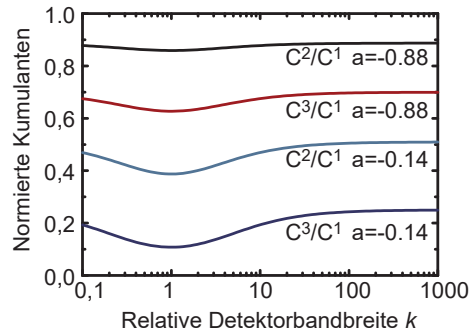


Abbildung 5.16: Normierte Kumulanten für  $a = -0.88$  und  $a = -0.14$  in Abhängigkeit von der relativen Detektorbandbreite  $k$ . Die normierten Kumulanten fallen bei einer relativen Detektorbandbreite um 1 und einer kleinen Asymmetrie zwischen den Tunnelraten  $a = -0.14$  stark ab.

etwa 5 Prozent. Die Änderung der zweiten und dritten Kumulanten ist bei einer Asymmetrie von  $a = -0.14$  größer. Die dritte normierte Kumulante ändert sich durch die Detektorbandbreite um circa 50 Prozent. Entsprechend kann die Abweichungen der Messung vom berechneten Wert in Abbildung 5.15(b) durch die Bandbreite des Detektors erklärt werden.

## 5.7 Zusammengefasste Ergebnisse

Quantensprünge für das Elektronentunneln zwischen einem Ladungsreservoir und einem einzelnen QP wurden direkt in der resonanten Fluoreszenz des QPs beobachtet.

- Es wurde eine Zeitauflösung von einer Millisekunde erreicht, die hauptsächlich durch die Einsammeffizienz der Photonen vom QP beschränkt ist.
- Die Tunnelraten für das Tunneln in und aus dem QP von etwas  $1 \text{ ms}^{-1}$  konnten direkt aus dem Telegraphenrauschen bestimmt werden.
- Mithilfe der Zählstatistik wurden die verschiedenen Kumulanten für die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Tunnelprozesse bestimmt.
- Es wurde eine Sub-Poisson-Verteilung der Wahrscheinlichkeitsverteilung bei ähnlichen Tunnelraten für das Tunneln in und aus dem QP gefunden. Sie weist auf die Coulomb-Blockade zwischen den Elektronen hin.



## *Teil III*

### *Ladungsträger-Einfang und -Emission unter resonanter Anregung*



# Auger-Rekombination in selbstorganisierten Quantenpunkten

Die Auger-Rekombination ist ein nicht-strahlender Prozess, bei dem die Rekombinationsenergie des Exzitons auf einen dritten Ladungsträger übertragen wird (Abbildung 6.1).<sup>1,2</sup> Dieser Prozess wurde bei Halbleiter-Nanostrukturen hauptsächlich in kolloidalen QPen untersucht, wo die Auger-Rekombinationszeit im Bereich von wenigen Pikosekunden liegt.<sup>3</sup> Sie führt zu einem Blinken in der Emission der Nanopartikeln, wodurch die Lichtemission verringert wird. Die Auger-Rekombination und ihr Einfluss auf die optischen Eigenschaften von selbstorganisierten QPen wurden bisher vernachlässigt. Mit Hilfe der zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz und einer passend gestalteten Probe<sup>4</sup> ist es in dieser Arbeit möglich geworden, die Auger-Rekombination, sowie ihren Einfluss auf die optischen Eigenschaften von selbstorganisierten QPen zu untersuchen.<sup>5</sup> In leistungsabhängigen Messungen konnte eine mittlere Zeitdauer für einen Auger-Prozess von 500 ns und ein Intensitätsabfall der RF-Intensität des Trions von ungefähr 80 Prozent beobachtet werden. Außerdem wurde eine Verbreiterung der trionischen Resonanz um einen Faktor 2 gemessen.

## 6.1 Intensitätsänderung durch Auger-Rekombination

In Abbildung 6.2 ist eine RF-Übersicht des exzitonsichen und trionischen Übergangs des QPs als Funktion der Gatespannung und der Anregungsfrequenz gezeigt. Unterhalb von 0.26 V ist das Fermi-Niveau im Rückkontakt unter dem ersten Energieniveau für Elektronen im QP. Daraus folgt, dass der QP unbeladen ist. Bei einer Gatespannung von  $V_G = 0.26$  V tunnelt das erste Elektron in den QP und die resonante Fluoreszenz des Übergangs des Trions kann bei einer Laserfrequenz von ca. 312.9 THz beobachtet werden.

Die RF-Intensitäten der Übergänge des Exzitons und des Trions wurden für verschiedene Laseranregungsleistungen gemessen, siehe Abbildung 6.3. Mit steigender Anregungsleistung nehmen die Intensitäten bis zu einer Anregungsleistung von  $0.5 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$  zu und erreichen danach ihre Sättigung. Die RF-Intensität des Exzitons ist um circa eine Größenordnung stärker als die des Trions, was sich auf eine Auger-Rekombination zurückführen lässt: Nach einer nicht-strahlenden Auger-Rekombination ist der QP unbeladen und der

<sup>1</sup> Jha, P. P. *et al.*, *ACS Nano* **3** (2009)

<sup>2</sup> Park, Y.-S. *et al.*, *ACS Nano* **8** (2014)

<sup>3</sup> Klimov, V. I. *et al.*, *Science* **287** (2000)

<sup>4</sup> Probe BO14425 (siehe Kapitel 3.1)

<sup>5</sup> Kurzmann, A. *et al.*, *Nano Lett.* **16** (2016)

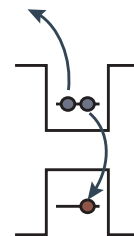


Abbildung 6.1: Auger-Rekombination in einem selbstorganisierten QP. Die Rekombinationsenergie eines Elektron-Loch-Paares wird auf ein weiteres Elektron übertragen und dieses aus dem QP emittiert.

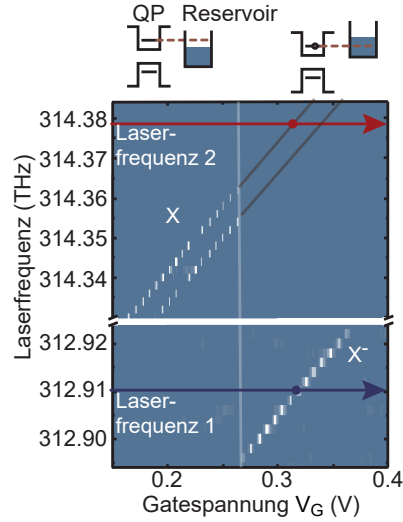


Abbildung 6.2: Abrastern der resonanten Fluoreszenz der Übergänge des Exzitons und des Trions für verschiedene Laserfrequenzen und Gatespannungen. Der blaue und der rote Pfeil markieren die Messungen in Abbildung 6.5. Die vertikale Linie markiert die Spannung, bei der die Fermi-Energie im Rückkontakt in Resonanz mit dem Grundzustand des QPs ist.

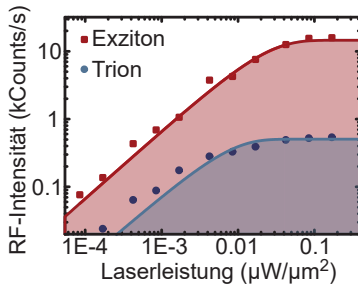


Abbildung 6.3: RF-Intensitäten des trionischen (blaue Punkte) und exzitonen (rote Rechtecke) Übergangs für unterschiedliche Laserleistungen. Die Intensität des Übergangs des Exzitons übersteigt die des Trions um mehr als eine Größenordnung.

Übergang des Trions kann nicht angeregt werden, bis ein Elektron in den QP getunnelt ist. Als Konsequenz nimmt die mittlere Intensität des trionischen Übergangs ab.

Mit der Tatsache, dass der leere QP resonante Fluoreszenz des exzitonen Übergangs zeigt, kann eine Auger-Rekombination nachgewiesen werden. Bei einer festen Gatespannung, bei der der QP im Gleichgewicht mit dem Rückkontakt mit einem Elektron beladen ist, werden zwei Laser zur resonanten Anregung eingeschaltet: Der eine Laser mit Laserfrequenz 1 ist in Resonanz mit dem Übergang des Trions (blauer Punkt in Abbildung 6.2), während der zweite Laser in Resonanz mit der extrapolierten Energie des Exzitons ist, roter Punkt in Abbildung 6.2. Extrapoliert heißt hier, dass mit Hilfe der Stark-Verschiebung die Resonanzenergie des Exzitons bei der Gatespannung berechnet wird, bei der auch das Trion im Gleichgewicht beobachtet wird (schwarze Linie in Abbildung 6.2). Entsprechend können beide Übergänge gleichzeitig bei der gleichen Gatespannung ( $V = 0.318 \text{ V}$ ) im Nichtgleichgewicht angeregt werden (blauer und roter Punkt in Abbildung 6.2). Anregung im Nichtgleichgewicht bedeutet an dieser Stelle: Der nichtstrahlende Auger-Prozess kann das zusätzliche Elektron ins Leitungsband emittieren, was zur Folge hat, dass der QP komplett entleert wird. Dieser Zustand ist im Nichtgleichgewicht mit dem Rückkontakt, solange kein Elektron in der mittleren Tunnelzeit zurück in den QP gelangt ist. Während dieser Zeitspanne lässt sich die resonante Fluoreszenz des Exzitons mit dem zweiten Laser beobachten.

Die resonante Fluoreszenz wird frequenz aufgelöst im Spektrometer gemessen (Abbildung 6.4), sodass die Fluoreszenz der Übergänge des Exzitons und des Trions energetisch getrennt werden können. Die Spektren werden für unterschiedliche Gatespannungen gemessen, sodass ein Schnitt bei einer Frequenz in Abbildung 6.4 einer typi-

schen RF-Messung mit einem Laser auf der APD entspricht. Die weißen Linien in Abbildung 6.4 bei  $f = 953.6$  THz für Gatespannungen zwischen 0.31 und 0.33 V resultieren vom Laserhintergrund. Auf dem Laserhintergrund erscheint bei  $V_G = 0.318$  V das Signal des Exzitons. Es werden zwei Schnitte bei  $f = 313.1$  THz und  $f = 314.6$  THz gemacht, sodass das typische RF-Signal des Exzitons und des Trions in Abbildung 6.5 beobachtet werden kann. Die RF-Intensität des Exzitons übersteigt die Intensität des Trions aufgrund einer hohen Auger-Rate im Vergleich zur Tunnelrate.

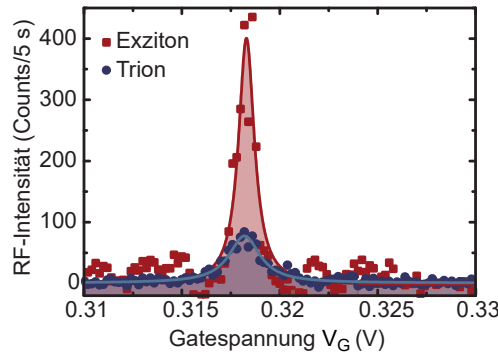


Abbildung 6.5: Vertikale Schnitte in Abbildung 6.4 für die Emissionsfrequenz des Exzitons und des Trions. Beide Übergänge werden bei gleichzeitiger Anregung bei der gleichen Gatespannung beobachtet. Die Messung des Exzitons ist bei dieser Gatespannung ohne Auger-Rekombination nicht möglich.

## 6.2 Messung der Auger-Rate

In einer zeitaufgelösten, gemittelten Messung kann die Auger-Rate bestimmt werden. Hierzu wird über  $5 \cdot 10^5 - 10^7$  Messungen mit einer Wiederholrate von  $20 \text{ ms}^{-1}$  gemittelt. Für die Messung wird eine Gatespannung von  $V = 0.318$  V angelegt, sodass der QP mit einem Elektron beladen ist und die Laserfrequenz wird so eingestellt, dass die RF des trionischen Übergangs beobachtet werden kann.

Nachfolgend soll im Detail anhand der Abbildung 6.6 die zeitaufgelöste Messung der Auger-Rekombination mit den beteiligten Prozessen und Raten beschreiben werden: Bei  $t = 0$  wird der Laser eingeschaltet und der Übergang des Trions mit der Absorptionsrate  $\gamma_{abs}$  angeregt, siehe Abbildung 6.6. Wenn der geladene QP im angeregten Zustand ist, d.h. ein Trion im QP ist, findet eine Auger-Rekombination mit der Rate  $\gamma_a$  statt. Danach ist der QP leer und er befindet sich im Grundzustand (0). Die Emission des Elektrons schaltet die Resonanz des Trions aus, bis ein Elektron mit der Tunnelrate  $\gamma_{In}$  in den QP tunnelt (Abbildung 6.6), sodass der Übergang des Trions wieder möglich ist. Der Übergang von einem geladenen QP bei  $t = 0$  zu einer Gleichgewichtssituation (bei der die Intensität des trionischen Übergangs sich aus dem Zusammenspiel zwischen Auger-Rekombination und Elektronentunneln ergibt) wird als exponentielle Abnahme mit einer Relaxationsrate  $\gamma_m$  in Abbildung 6.7 beobachtet.

RF-Messungen am Übergang des Trions sind für sieben unterschiedliche Anregungsleistungen in Abbildung 6.7 dargestellt. Die

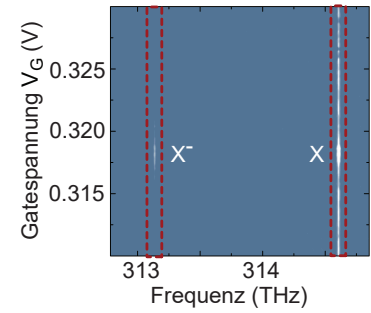


Abbildung 6.4: Es wird gleichzeitig auf dem Übergang des Trions und des Exzitons resonant im Spektrometer gemessen. Der blaue und der rote Pfeil in Abbildung 6.2 markieren die Messungen. Die Frequenzen weichen in dieser Messung von den Laserfrequenzen in Abbildung 6.2 aufgrund der Messungenauigkeit des Spektrometers ab.

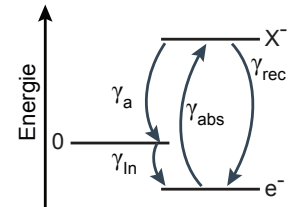


Abbildung 6.6: Energieniveaus der unterschiedlichen Zustände in dieser Messung mit den Übergangsraten.

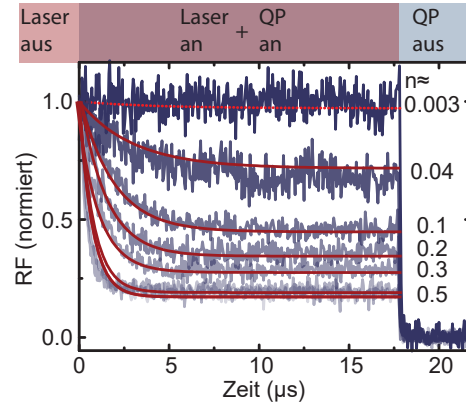


Abbildung 6.7: Zeitaufgelöste RF-Messung des trionischen Übergangs. Der Laser wird bei  $t = 0$  mit unterschiedlichen Leistungen eingeschaltet. Die unterschiedlichen Leistungen führen zu unterschiedlichen Besetzungswahrscheinlichkeiten  $n$  des QPs mit einem Trion.

RF-Intensitäten der Messungen streben im Gleichgewicht verschiedene Werte an. Hierbei bestimmt die Laserleistung die Absorptionsrate  $\gamma_{abs}$  und damit die Wahrscheinlichkeit  $n$  für ein Trion im QP (siehe Kapitel 2.5.1). Diese kann direkt aus der Sättigungskurve in Abbildung 6.8 abgelesen werden. Die absolute Intensität des trionischen Übergangs wird für zwei unterschiedliche Zeiten in der zeitaufgelösten Messung über die Anregungsleistung aufgetragen. Die roten Messdaten zeigen die Intensität des Trions ohne Auger-Rekombination direkt nach dem Einschalten des Lasers, während die blauen Messpunkte in Abbildung 6.8 die RF-Intensität nach  $10 \mu\text{s}$  mit Auger-Rekombination wiedergeben. Wird der QP in die Sättigung getrieben (hohe Laserleistungen), ist er mit einer Wahrscheinlichkeit von 50 Prozent mit einem Trion und mit einer Wahrscheinlichkeit von 50 Prozent mit einem Elektron besetzt. Entsprechend ergibt sich für die mittlere Besetzung mit einem Trion  $n = 0.5$ . Durch die lineare Abhängigkeit von der RF-Intensität kann die mittlere Besetzung  $n$  für alle Laserleistungen aus der Messung in Abbildung 6.8 bestimmt werden. Im Vergleich zu der Messung in Kapitel 4.8 wurde hier die Anregungsleistung und nicht die Gatespannung gepulst, sodass die Abnahme nicht durch eine veränderte Einfangrate von Ladungsträgern beeinflusst werden kann.

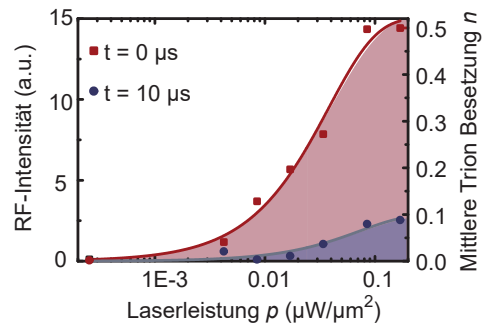


Abbildung 6.8: Intensität des Trions für verschiedene Laserleistungen bei  $t = 0$  (rote Messdaten) und bei  $t = 10 \mu\text{s}$  (blaue Messdaten). Die Messdaten wurden aus der zeitaufgelösten Messung (Abbildung 6.7) entnommen, wobei auf eine Normierung verzichtet wurde. Die Kurven sind Anpassungen an die Messdaten mit Gleichung 2.34.



Die zeitaufgelösten Messungen in Abbildung 6.7 sind bei  $t = 0$  auf 1 normiert und die absolute Intensität für  $n = 0.003$  ist kleiner als für  $n = 0.5$ . Für eine mittlere Besetzung  $n = 0.003$  bei niedriger Laserleistung ist die zeitliche Entwicklung des RF-Signals nahezu konstant. Der QP ist hauptsächlich mit einem Elektron besetzt (kein Trion), deshalb kann die Auger-Rekombination vernachlässigt werden. Für steigende Werte von  $n$  wird der Intensitätsabfall stärker. Bei einer mittleren Besetzung  $n = 0.1$  fällt das normierte Signal beispielsweise auf einen Gleichgewichtswert von 0.5 ab. Bei dieser Laserleistung enden 50 Prozent der Messungen in einem ungeladenen QP, bei dem das Elektron durch die Auger-Rekombination vom QP emittiert wurde. Für eine gesättigte Anregung mit  $n = 0.5$  ist die RF-Intensität im Gleichgewicht um 80 Prozent reduziert. In Abbildung 6.9 wird im Folgenden gezeigt, dass die Abnahme des RF-Signals von der Auger-Rate und der Tunnelrate abhängt. Um eine größere RF-Intensität zu erreichen, muss entsprechend eine der beiden Raten geändert werden. Die Auger-Rate kann durch den Wachstumsprozess (Größe der QPe) verändert werden, wohingegen die Tunnelrate über die Tunnelbarriere einstellbar ist.

### 6.3 Ratengleichungen zur Auger-Rekombination

In diesem Fall soll wiederum mit einem Ratengleichungsmodell die RF-Intensität für verschiedene Auger- und Tunnelraten berechnet werden. Die zeitliche Entwicklung des normierten RF-Signals ist durch die Differentialgleichungen

$$\dot{P}_f(t) = \gamma_{In}P_{nf}(t) - n\gamma_a P_f(t) \quad \text{und} \quad (6.1)$$

$$\dot{P}_{nf}(t) = -\dot{P}_f(t) \quad (6.2)$$

gegeben, wobei  $P_{nf}$  und  $P_f$  die Besetzungswahrscheinlichkeiten des leeren QPs (nicht-fluoreszierender Zustand) und des geladenen QPs (fluoreszierender Zustand) sind. Die Abhängigkeit der Besetzung des oberen Zustandes in einem Zwei-Niveau-System  $n$  von der Laserleistung  $p$  ist durch die Sättigungskurve <sup>6,7</sup> (Kapitel 2.5.1) gegeben.

Mit der Bedingung  $P_f(0) = 1$  können die Gleichungen 6.1 und 6.2 gelöst werden. Es ergibt sich

$$P_f(t) = \frac{\gamma_{In} + n\gamma_a e^{-\gamma_m t}}{\gamma_{In} + n\gamma_a}, \quad (6.3)$$

wobei  $P_f(t)$  direkt die gemessenen Transienten in Abbildung 6.7(a) mit der Relaxationsrate

$$\gamma_m = \gamma_{In} + n\gamma_a \quad (6.4)$$

beschreibt. Eine Anpassung an die Daten mit den zugehörigen Werten von  $n$  und  $\gamma_{In} = 0.2 \mu\text{s}^{-1}$  (siehe Kapitel 4) ergibt die Auger-Rate  $\gamma_a = 2.3 \mu\text{s}^{-1}$ . Die sehr guten Anpassungen an die Daten sind als rote Linien in Abbildung 6.7 erkennbar und konnten mit nur einem freien Parameter der Auger-Rate  $\gamma_a$  erhalten werden.

<sup>6</sup> Loudon, R. (Oxford University Press, 2010)

<sup>7</sup> Muller, A. et al., *Phys. Rev. Lett.* **99** (2007)

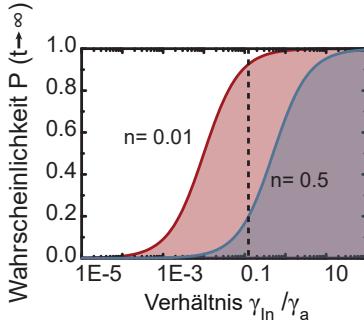


Abbildung 6.9: Berechnung der normierten Intensitäten des trionischen Übergangs im Gleichgewicht für verschiedene Verhältnisse zwischen Tunnelrate und Auger-Rate.

Die Auger-Rate unterscheidet sich jedoch um eine Größenordnung von der in Kapitel 4.7.1 bestimmten Auger-Rate. Diese Abweichung kann verschiedene Ursachen haben. Zum einen wurden die Raten an unterschiedlichen QPen gemessen, die unterschiedliche Größen haben. Die Emissionsenergie der Zustände zeigt bereits, dass der in Kapitel 4.7.1 untersuchte QP etwas kleiner ist und somit auch eine größere Auger-Rate erwartet wird. Zum anderen wurden die Auger-Rate einmal mit einer gepulsten Gatespannung bestimmt, wobei auch andere Raten in die Messung mit eingegangen sind und die Bandstruktur verkippt wurden und einmal mit einer gepulsten Laserintensität, bei der sich die Bandstruktur nicht geändert hat. Somit ist die Messung mit einer gepulsten Laserintensität direkter.

#### 6.4 Auger vs. Tunneln

Die Relaxationsrate ist durch das Zusammenspiel von Tunnel- und Auger-Rate gegeben, sodass eine Verringerung der RF-Intensität nur beobachtet werden kann, wenn die Tunnelrate kleiner als die Auger-Rate ist. Für den Fall einer gegenüber der Auger-Rate hohen Tunnelrate ergibt sich die Situation, dass ein emittiertes Elektron sofort wieder durch Tunneln aus dem Reservoir ersetzt wird und die RF-Intensität des Trions nicht einbricht. Die RF-Intensität im Gleichgewicht kann aus Gleichung 6.3 für  $t \rightarrow \infty$  abgeleitet werden, hängt von der Auger-Rate, der Tunnelrate und der Wahrscheinlichkeit  $n$  ab und ist gegeben durch:

$$P_f(\infty) = \frac{\gamma_{In}}{\gamma_{In} + n\gamma_a} = \frac{\gamma_{In}}{\gamma_m}. \quad (6.5)$$

Die normierte RF-Intensität im Gleichgewicht ist in Abbildung 6.9 für eine starke Anregungsleistung ( $n = 0.5$  blau) und eine schwache Anregungsleistung ( $n = 0.01$  rot) gezeigt. Ist die Tunnelrate viel kleiner als die Auger-Rate ( $\gamma_{In}/\gamma_a < 10^{-3}$ ) fällt die Wahrscheinlichkeit  $P$  für einen fluoreszierenden Zustand auf 0 ab und das RF-Signal wird komplett unterdrückt. Für hohe Tunnelraten im Vergleich zur Auger-Rate ( $\gamma_{In} > 10\gamma_a$ ) wird die RF-Intensität nicht durch den Auger-Prozess beeinflusst und die Gleichgewichtsamplitude  $P(t \rightarrow \infty)$  ist entsprechend  $\approx 1$ . In diesem Bereich liegen Diodenstrukturen mit selbstorganisierten QP, die in anderen Arbeiten benutzt werden.<sup>8</sup> Bei einem Verhältnis zwischen den beiden Raten zwischen  $10^{-3}$  und 10 kann die Abnahme der RF-Intensität durch die Anregungsleistung geregelt werden. Die für diese Arbeit verwendete Probe liegt mit ihrem Verhältnis von Tunnel- und Augerrate bei einem Wert von 0.1, markiert durch eine gestrichelte Linie in Abbildung 6.9. In diesem Bereich ist die RF-Intensität des trionischen Übergangs mit der Laserleistung einstellbar. Dies wird als Änderung des normierten RF-Signals zwischen 0.2 und 1 in Abbildung 6.7 beobachtet.

Im Folgenden zeigt eine zeitaufgelöste RF-Messung mit zwei Lasern, dass ein Elektron durch den Auger-Prozess aus dem QP emittiert und die Gleichgewichtssituation durch Tunneln wiederhergestellt wird. Zuerst wird der QP in Resonanz mit dem Übergang

<sup>8</sup> Kloeffer, C. et al., *Phys. Rev. Lett.* 106 (2011)

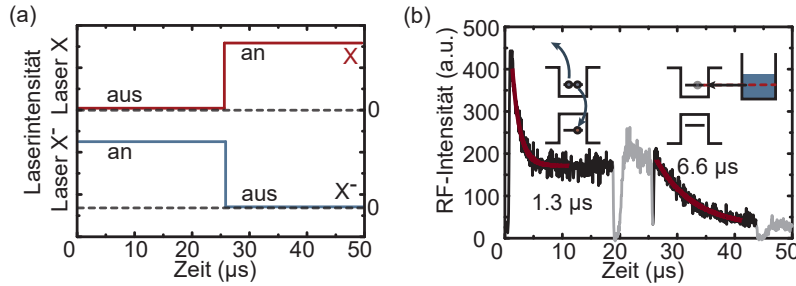


Abbildung 6.10: (a) Schematische Darstellung der Laserpuls-Abfolge für die zeitaufgelöste Messung der Auger-Rekombination und der Tunnelrate mit zwei Anregungslasern. (b) Nachdem der erste Laser eingeschaltet wird, zeigt das Signal des Trions eine exponentielle Abnahme. Diese Abnahme kann durch die Auger-Rekombination erklärt werden. Nachdem der zweite Laser für  $t > 25 \mu\text{s}$  eingeschaltet wird, ist ein exponentieller Abfall des Signals des Exzitons zu sehen. Dieser exponentielle Abfall kann durch Tunneln eines Elektrons in den QP erklärt werden. Die grauen Messdaten dienen zur Hintergrundkorrektur der Messdaten.

des Trions bis zur Gleichgewichtssituation angeregt, siehe Abbildung 6.10(a). Danach wird die Anregungsfrequenz zur Energie des Exzitons geändert, indem der zweite Laser eingeschaltet wird (Abbildung 6.10(a)). Nachdem die Laserfrequenz bei  $t = 25 \mu\text{s}$  gewechselt wird, wird in Abbildung 6.10(b) ein RF-Signal des exzitonischen Übergangs gemessen.

Auch für  $t > 25 \mu\text{s}$  wird ein exponentieller Abfall der RF-Intensität des exzitonischen Übergangs beobachtet. Es wird die Relaxationsrate  $\gamma_r = 0.15 \mu\text{s}^{-1}$  bestimmt, die in guter Übereinstimmung mit der in Kapitel 4 bestimmten Tunnelrate ist. Dies bestätigt die Annahme, dass der QP nach einem Auger-Rekombinationsprozess durch Elektronentunneln wieder beladen wird.

## 6.5 Linienverbreiterung

Die Auger-Rekombination beeinflusst nicht nur die Intensität der Resonanz des Trions, sondern auch die Linienbreite. Um dies zu untersuchen wird die Resonanz des Trions für verschiedene Verstimmungen zwischen QP-Frequenz und Laserfrequenz zeitaufgelöst gemessen (siehe Abbildung 6.11), sodass die Linienform für alle Zeiten nach dem Laserpuls bestimmt werden kann. In Abbildung 6.12 ist die zeitliche Entwicklung der Resonanz von  $t = 0$  bis  $t = 3 \mu\text{s}$  dargestellt. Bei  $t = 0$  ist der QP mit einem Elektron geladen, während der Ladungszustand bei  $t = 3 \mu\text{s}$  von der Auger-Rate und der Tunnelrate abhängt. Der prozentuale Intensitätsabfall der Resonanz nimmt mit steigender Verstimmung zwischen QP-Resonanz und Laser ab, siehe Abbildung 6.11; ein Zusammenhang, der auch in Gleichung 6.5 zusammen mit Gleichung 2.34 erkennbar ist.

In Abbildung 6.13 sind zwei Resonanzen des Trions, die bei  $t = 0$  (rote Messdaten) und  $t = 10 \mu\text{s}$  (blaue Messdaten) aufgenommen wurden, zusammen mit Lorentz-Anpassungen gezeigt. Die Intensitäten der Resonanzen wurden bei  $\Delta\omega = 0$  auf 1 normiert, damit die Linienbreiten verglichen werden können. Die Lorentz-Anpassung für kurze Zeiten hat eine Linienbreite von  $1.3 \mu\text{eV}$  und steigt für lange

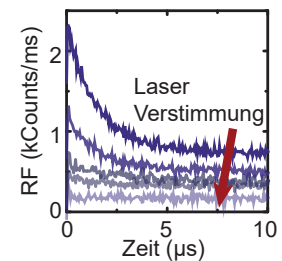


Abbildung 6.11: Transienten für verschiedene Verstimmungen zwischen Laserenergie und Resonanzenergie des trionischen Übergangs.

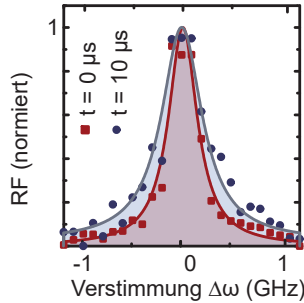


Abbildung 6.13: Normierte Resonanzen bei  $t = 0$  (rote Messdaten) und  $t = 10$  μs (blaue Messdaten).

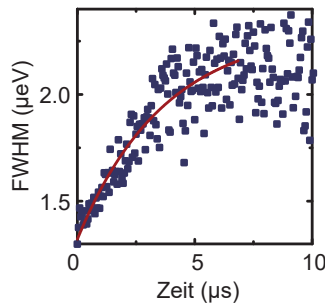


Abbildung 6.14: Die Linienbreite verändert sich von  $1.3$  μeV um einen Faktor 1.6 auf  $2.2$  μeV. Die rote Kurve ist eine Anpassung an die Messdaten mit einer Exponentialfunktion.

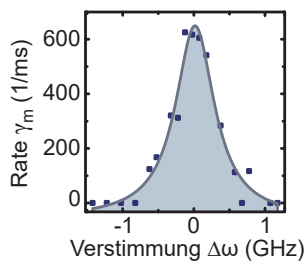


Abbildung 6.15: Relaxationsraten  $\gamma_m$  für verschiedene Verstimmungen  $\Delta\omega$ .

<sup>9</sup> Englisch: power broadening

Zeiten auf circa  $2$  μeV. In Abbildung 6.14 ist der gesamte zeitliche Verlauf der Linienbreite bis zu einer Zeit von  $10$  μs nach dem Laserpuls nochmals dargestellt.

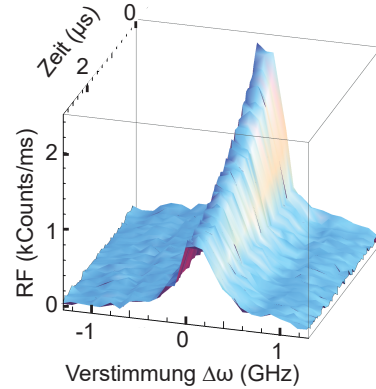


Abbildung 6.12: Zeitaufgelöste Messung der Resonanz des Trions nachdem der Laser bei  $t = 0$  mit einer Leistung von  $0.4$  μW/μm<sup>2</sup> eingeschaltet wird.

Die Verbreiterung kann direkt durch den Einfluss der Verstimmung  $\Delta\omega$  auf die Relaxationsrate  $\gamma_m$  erklärt werden. Bei zunehmender Laserverstimmung nimmt die mittlere Besetzung  $n$  ab, vgl. Gleichung 2.34, weshalb auch die Relaxationsrate  $\gamma_m$  und die Wahrscheinlichkeit für eine Auger-Rekombination abnimmt. Damit ist auch die Intensitätsänderung des trionischen Übergangs in der Mitte des Übergangs bei  $\Delta\omega = 0$  größer als an den Rändern, wodurch die Linie im Gleichgewicht verbreitert wird. Die verschiedenen Relaxationsraten können durch Anpassungen an die Messungen in Abbildung 6.12 bestimmt werden, siehe Abbildung 6.15. Die Relaxationsrate nimmt von etwa  $600$  ms<sup>-1</sup> in der Mitte der Resonanz auf 0 an den Flanken des trionischen Übergangs ab.

## 6.6 Berechnete Linienbreite

Auch ohne Auger-Prozess hängt die Linienbreite eines Übergangs von der Laserleistung ab. Dieser Effekt ist als Leistungsverbreiterung<sup>9</sup> bekannt und wurde bereits in Kapitel 2.5.5 beschrieben. Entsprechend wurde die Messung aus Abbildung 6.12 für verschiedene Leistungen wiederholt und die Linienbreiten jeweils für  $t = 0$  und  $t = 10$  μs bestimmt. Die gemessenen Linienbreiten für  $t = 0$  mit der bekannten Linienverbreiterung sind als rote Messpunkte in Abbildung 6.16 dargestellt; zusammen mit einer Anpassung von Gleichung 2.36 an die Messdaten mit  $T_2 = 975$  ps. Die Linienbreiten für die Resonanz im Gleichgewicht  $t \rightarrow \infty$  kann direkt aus den Gleichungen 2.34, 6.5 und 2.36 ohne freie Parameter berechnet werden. Hierfür wird Gleichung 2.36 nach der Rabi-Frequenz  $\Omega$  umgestellt und in Gleichung 2.34 eingesetzt:

$$n = \frac{1}{2} \frac{w(t=0)^2/4 - 1/T_2^2}{\Delta\omega^2 + w(t=0)^2/4}. \quad (6.6)$$

Damit hängt die Wahrscheinlichkeit für die Besetzung des QPs mit einem Elektron-Loch-Paar  $n$  von der Linienbreite bei  $t = 0$  ( $w(t=0)$ ),

der  $T_2$ -Zeit und der Verstimmung  $\Delta\omega$  ab. Die mittlere Besetzung  $n$  wir nun in Gleichung 6.5 eingesetzt und die Verstimmung  $\Delta\omega$  bestimmt, bei der die Intensität auf die Hälfte abgefallen ist. Diese Verstimmung entspricht der Linienbreite im Gleichgewicht:

$$w(t \rightarrow \infty) = \frac{1}{T_2} \sqrt{\frac{T_2^2 w(t=0)^2 (\gamma_a + 2\gamma_{In}) - 4\gamma_a}{2\gamma_{In}}}. \quad (6.7)$$

Die Rechnung ist als blaue Linie in Abbildung 6.16 (ohne frei Parameter) dargestellt. Sie ist in guter Übereinstimmung mit den Messdaten (blaue Punkte).

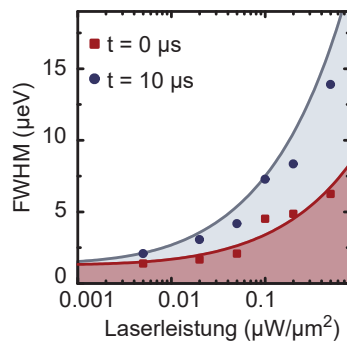


Abbildung 6.16: Linienbreiten des trionischen Übergangs bei  $t = 0$  und  $t = 10 \mu\text{s}$  für unterschiedliche Laserleistungen. Die roten Messdaten zeigen die Linienbreite der trionischen Resonanz, wenn kein Auger-Prozess stattfindet. Die Linienbreite nimmt durch die Leistungsverbreiterung zu. Im Gleichgewicht (blaue Messdaten) findet die Auger-Rekombination statt und die Linienverbreiterung ist größer. Die Linienbreite mit Auger-Rekombination ist um einen Faktor 2 größer als die Linienbreite ohne Auger-Rekombination.

Die Linienbreite der trionischen Resonanz nimmt für kurze Zeiten  $t = 0$  (rote Messpunkte in Abbildung 6.16) mit der Anregungsleistung von  $2 \mu\text{eV}$  auf  $6 \mu\text{eV}$  zu. Diese Verbreiterung entspricht der bekannten Leistungsverbreiterung. Im Gleichgewicht ( $t = 10 \mu\text{s}$ ) (blaue Messpunkte in Abbildung 6.16) entspricht die Linienbreite des trionischen Übergangs zunächst der Linienbreite bei  $t = 0$ . Der Auger-Prozess ändert die optischen Eigenschaften der trionischen Resonanz bei dieser Anregungsleistung nicht. Mit steigender Leistung nimmt die Linienbreite der trionischen Resonanz im Gleichgewicht stärker zu als die Linienbreite bei  $t = 0$ . Sie erreicht in der Sättigung (bei einer Leistung von  $0.5 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ ) einen Wert von  $14 \mu\text{eV}$ . Entsprechend übersteigt, bei hohen Leistungen, die Linienbreite im Gleichgewicht die Linienbreite bei  $t = 0$  um mehr als einen Faktor zwei. Dies wird durch die Rechnungen bestätigt.

## 6.7 Zusammenfassende Ergebnisse

In diesem Kapitel konnte gezeigt werden, dass die Auger-Rekombination auch die Intensität der Fluoreszenz in selbstorganisierten QPen beeinflussen kann. Ein Effekt, der für einzelne selbstorganisierte QPe bisher vernachlässigt wurde.

- Es wurde die zeitaufgelöste RF-Messungen des trionischen Übergangs untersucht und eine Auger-Rate von  $2.3 \mu\text{s}^{-1}$  bestimmt.

- In der verwendeten Probe ist die Auger-Rate in der gleichen Größenordnung wie die Tunnelrate aus dem Reservoir in den QP. Dies ermöglicht eine Untersuchung des Einflusses der Auger-Rate auf die RF-Intensität und die Linienbreite des trionischen Übergangs.
- Die Messungen können durch ein Ratengleichungsmodell beschrieben werden. Ein schneller Prozess, der die Elektronen in den QP nachfüllt, kann die optischen Eigenschaften des QPs verbessern.

# Einfang von Photoelektronen

Beim Auger-Prozess im vorherigen Kapitel wird ein Ladungsträger aus dem Quantenpunkt emittiert; im folgenden Kapitel soll es um den Einfang von Elektronen durch eine optische Anregung gehen.<sup>1</sup> Neben der resonanten Anregung innerhalb des Quantenpunkts können auch freie, energetisch hoch-angeregte Ladungsträger aus dem Rückkontakt erzeugt werden, die dann in den QP relaxieren. Dieser Prozess wurde hauptsächlich in Proben ohne elektrische Gates beobachtet und führt zu einer starken Reduktion der Emissionsintensität.<sup>2,3,4</sup> Innerhalb dieses Kapitels wird gezeigt, dass ein Einfang von freien Elektronen auch in Proben mit elektrischem Gate und Tunnelraten im Bereich von Millisekunden stattfindet.<sup>5</sup>

## 7.1 Beobachtung des Trions

In Abbildung 7.2 ist eine 2D-Übersicht der RF-Intensität der exzitonen und trionischen Übergänge für verschiedene Laserfrequenzen und Gatespannungen dargestellt. Das Exziton wird bei Laserfrequenzen von 318.8 THz bis zu einer Gatespannung von 0.47 V beobachtet. In Messungen an Proben mit größeren Tunnelraten wird ab dieser Gatespannung das Trion gemessen (siehe Abbildung 3.10), da ein Elektron in den QP tunneln kann. Hier wird der Übergang des Trions auch unterhalb dieser Spannung beobachtet, was durch den Einfang von Photoelektronen aus dem Rückkontakt erklärt werden kann. Dieser Prozess ist schematisch in Abbildung 7.1 dargestellt. Die Photoelektronen werden durch den Laser im Rückkontakt erzeugt. Sie relaxieren zu der QP-Schicht und beladen den QP, auch wenn Elektronentunneln in den QP energetisch verboten ist. Er kann daher nicht mehr auf dem Übergang des Exzitons angeregt werden, bis das Elektron zurück ins Reservoir tunnelt.

Der Einfang von Photoelektronen kann in dieser Probe aufgrund der geringen Tunnelrate im Bereich von  $\text{ms}^{-1}$  beobachtet werden. Damit wird ein Gleichgewicht mit dem Rückkontakt nur sehr langsam erreicht. Die kleine Tunnelrate führt außerdem zu einer starken Unterdrückung der resonanten Fluoreszenz des trionischen Übergangs. Das Verhältnis zwischen Tunnelrate und Auger-Rate ( $\gamma_{\text{In}}/\gamma_{\text{a}}$ ) ist hier circa  $5 \cdot 10^{-4}$ . In Abbildung 6.9 entspricht dieses Verhältnis einer nahezu kompletten Unterdrückung des RF-Signals des trionischen Übergangs. Folglich konnte der Übergang des Trions nur bei hohen Laserleistungen (starke absolute RF-Intensität) beobachtet werden.

<sup>1</sup> Für die Messungen in diesem Kapitel wurde die Probe BO14560 (siehe Kapitel 3.1) verwendet.

<sup>2</sup> Nguyen, H. S. *et al.*, *Phys. Rev. B* **87** (2013)

<sup>3</sup> Nguyen, H.-S. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **108** (2012)

<sup>4</sup> Arnold, C. *et al.*, *Phys. Rev. X* **4** (2014)

<sup>5</sup> Kurzmann, A. *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **108** (2016)

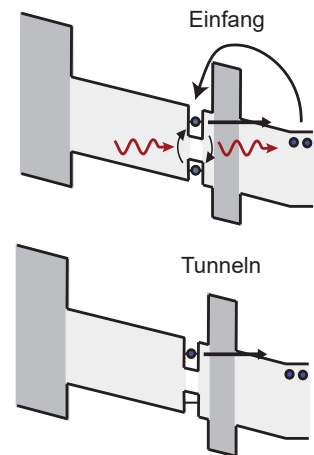


Abbildung 7.1: Schematische Darstellung der Prozesse unter resonanter Anregung. Der Übergang des Exzitons kann angeregt werden, bis ein Photoelektron in den QP relaxiert ist. Er kann danach nicht mehr angeregt werden, bis das Elektron aus dem QP tunnelt.



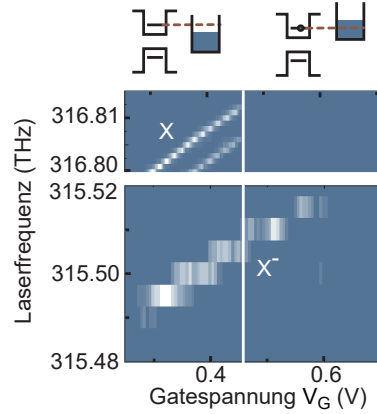


Abbildung 7.2: RF des Übergangs des Exzitons und des Trions für verschiedene Gatespannungen und Frequenzen des Anregungslasers. Der Übergang des Trions wird bei Gatespannungen gemessen, bei denen Tunneln in den QP energetisch verboten ist.

Die Leistungsverbreiterung erklärt die Verbreiterung der Resonanz des Trions im Vergleich zur Resonanz des Exzitons in Abbildung 7.2.

## 7.2 Zeitaufgelöste Messung der Einfangrate

Der Einfang von Elektronen in den QP kann direkt in einer zeitaufgelösten RF-Messung beobachtet werden. Hierfür werden zwei Laser verwendet und es wird über mehrere Messungen gemittelt. Der erste Laser treibt den Übergang des Exzitons bei einer Frequenz von 316.803 THz mit einer konstanten und niedrigen Laserleistung. Die Intensität dieses Lasers ist als blaue Linie in Abbildung 7.3 dargestellt. Sie wurde so gewählt, dass keine Elektronen eingefangen werden. Die Frequenz des zweiten Lasers (319.67 THz) ist nicht in Resonanz mit den QP-Niveaus, sodass eine Anregung von Elektronen im QP ausgeschlossen werden kann. Außerdem reicht die Energie des Lasers nicht aus um eine Elektron-Loch-Paar in der GaAs-Umgebung zu erzeugen. Die Intensität des zweiten Lasers wird gepulst und ist circa zwei Größenordnungen höher als die Intensität des ersten Lasers. Bei  $t = 0$  wird der zweite Laser, wie in Abbildung 7.3 dargestellt, ein- und bei  $t = 0.5$  ms ausgeschaltet. Die Messung wird für verschiedene Verstimmungen zwischen Laserenergie und Energie des Exzitons wiederholt, sodass die Lorentz-förmige Resonanz des exzitonschen Übergangs zeitaufgelöst beobachtet werden kann, siehe Abbildung 7.4. Es wird eine Reduktion der Intensität und ein Verschieben des Maximums des exzitonschen Übergangs beobachtet. Die zeitaufgelöste Messungen der vollständigen Resonanz ermöglicht es die Reduktion der Intensität und die Verschiebung getrennt auszuwerten. Bei der Messung einer einzelnen Transiente bei einer Gatespannung beeinflussen immer beide Effekte die RF-Intensität.

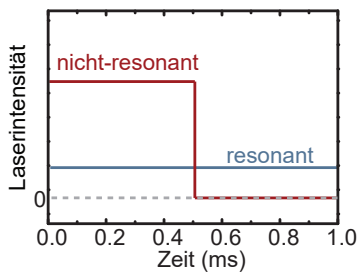


Abbildung 7.3: Schematische Darstellung der Laserintensitäten. Der Übergang des Exzitons wird während der Messung resonant mit einer konstanten Laserintensität angeregt (blaue Linie). Der zweite Laser mit einer Frequenz nahe der Resonanzfrequenz wird gepulst mit hoher Intensität betrieben (rote Linie).

Die zeitliche Veränderung der maximalen Intensität des exzitonschen Übergangs ist in Abbildung 7.6 dargestellt. Hierfür wurden die Resonanzen in Abbildung 7.4 für die unterschiedlichen Zeiten mit einer Lorentz-Funktion angepasst und die Amplitude in Abbildung 7.6 (dunkelblaue Kurve) verschoben aufgetragen. Die Messung



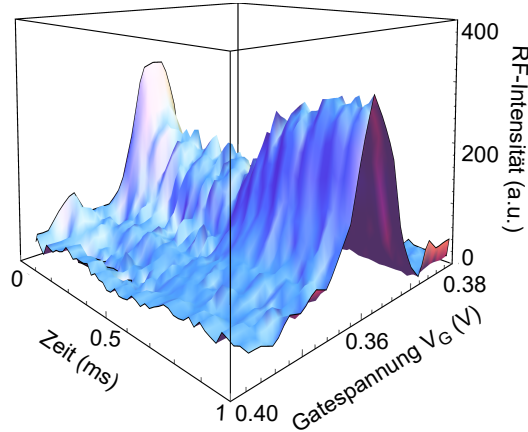


Abbildung 7.4: Zeitaufgelöste Resonanz des Exzitons, wenn ein zweiter, nicht-resonanter Laser bei  $t = 0$  eingeschaltet wird. Die RF-Intensität des Übergangs des Exzitons nimmt zunächst exponentiell ab. Bei  $t = 0.5$  ms wird der zweite Laser ausgeschaltet und das RF-Signal steigt wieder an. Außerdem wird eine Änderung der energetischen Lage der Resonanz beobachtet, die in Abbildung 7.7 genauer betrachtet wird.

in Abbildung 7.4 wurde für zwei weitere Laserfrequenzen des resonanten Lasers und damit zwei weitere Spannungsbereiche wiederholt. Die Amplituden der Lorentz-Anpassungen sind für diese drei unterschiedlichen Gatespannungsbereiche um  $V_G = 0.377$  V, 0.42 V und 0.47 V in Abbildung 7.6 aufgetragen. Zunächst wird der exponentielle Abfall für  $t < 0.5$  ms näher betrachtet. Die Rate  $\gamma_m = 13$  ms $^{-1}$  für den exponentiellen Abfall in Abbildung 7.6 wird über eine Anpassung mit einer Exponentialfunktion bestimmt (rote Linie). Sie hängt nicht von der Gatespannung, aber von der Anregungsleistung des nicht-resonanten Lasers ab. Eine Erhöhung der Anregungsleistung des Lasers erhöht die Wahrscheinlichkeit für die Erzeugung und den Einfang eines Photoelektrons im QP.  $\gamma_m$  wird daher als Einfangrate bezeichnet, sie nimmt linear mit der Laserleistung zu, siehe Abbildung 7.5. Der lineare Zusammenhang zwischen der Einfangrate und der Laserleistung wird für eine Generation von Photoelektronen erwartet.

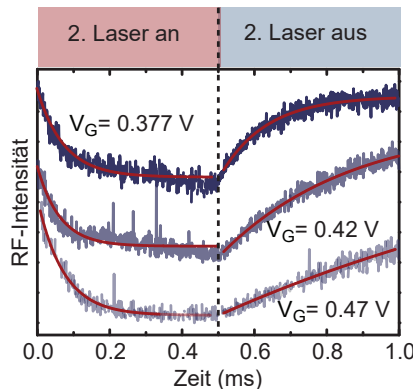


Abbildung 7.6: Zeitaufgelöste RF-Intensität des Übergangs des Exzitons für verschiedene Gatespannungen. Die Intensitäten werden durch Lorentz-Anpassungen an drei Messungen in unterschiedlichen Gatespannungsbereichen, wie in Abbildung 7.4 für  $V_G = 0.377$  V zu sehen, bestimmt und sind hier verschoben aufgetragen. Das RF-Signal wird reduziert, wenn der zweite nicht-resonante Laser eingeschaltet wird und steigt wieder an, wenn er ausgeschaltet wird.

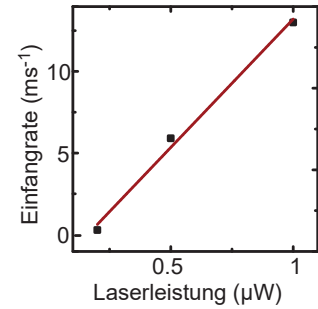


Abbildung 7.5: Einfangraten der Photoelektronen in den QP für verschiedenen Laserleistungen.

In Abbildung 7.7 beobachtet man zusätzlich zu einer zeitlichen Verminderung der Intensität eine Veränderung der Resonanzfrequenz des exzitonischen Übergangs zu kleineren Gatespannungen. Eine Verschiebung der Resonanzfrequenz könnte durch die Ansammlung von Photoelektronen an einer Grenzfläche, die die Bandstruktur und damit das elektrische Feld am QP verändern, verursacht werden.<sup>6,7</sup>

<sup>6</sup> Houel, J. et al., *Phys. Rev. Lett.* 108 (2012)

<sup>7</sup> Siyushev, P. et al., *Phys. Rev. Lett.* 110 (2013)

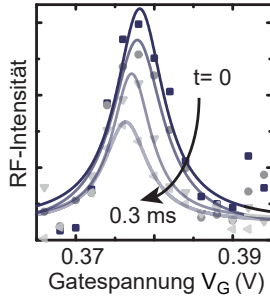


Abbildung 7.7: Entwicklung der Lorentz-förmigen Resonanz, nachdem der zweite Laser eingeschaltet wurde. Eine reduzierte Intensität und eine Energieverschiebung können beobachtet werden.

### 7.3 Entladen des QPs

In Abbildung 7.6 kann für  $t > 0.5$  ms auch das Tunneln des Elektrons aus dem QP in den Rückkontakt beobachtet werden. Ein exponentieller Anstieg der RF-Intensität des exzitonischen Übergangs wird gemessen, wenn der nicht-resonante Laser ausgeschaltet und damit die Generation von Photoelektronen gestoppt wird. Die Tunnelraten sind in Abbildung 7.8 über der Gatespannung aufgetragen und nehmen von  $7.8 \text{ ms}^{-1}$  auf  $1.2 \text{ ms}^{-1}$  ab. Die Tunnelrate wird mit steigender Gatespannung kleiner, weil die Tunnelbarriere vergrößert und damit die Transparenz der Barriere reduziert wird.

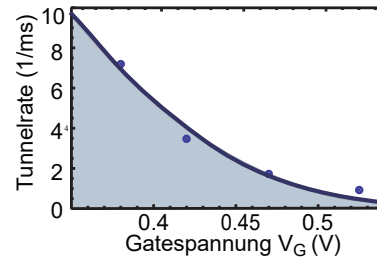


Abbildung 7.8: Gemessene Tunnelraten für unterschiedliche Gatespannungen zusammen mit einer Anpassung an die Daten. Für die Anpassung wurde die Transparenz der Tunnelbarriere mit der WKB-Näherung berechnet.

Die Transparenz der Barriere kann mit Hilfe der WKB-Näherung in Abhängigkeit von der Gatespannung berechnet werden. Das Ergebnis wurde an die Messdaten mit einer "attempt"-Frequenz der Elektronen von  $f_a = 349 \text{ ns}^{-1}$  angepasst (blaue Kurve in Abbildung 7.8). Die Berechnung stimmt gut mit den Messungen überein, weshalb man zwei Aussagen treffen kann:

1. Die beobachteten Transienten in Abbildung 7.6 für  $t > 0.5$  ms werden durch Tunneln von Elektronen aus dem QP verursacht.
2. Und wichtiger, die Abnahme des RF-Signals für  $t < 0.5$  ms wird durch den Einfang von Elektronen in den QP verursacht, die die Resonanzenergie des QPs vom Exziton zum Übergang des Trions verschiebt.

Bei einer Anregung unterhalb der Energie der Bandlücke ist dies durch die Erzeugung von Photoelektronen aus dem hochdotierten Rückkontakt möglich. Die Tunnelrate bei einer Gatespannung von  $0.53 \text{ V}$  wurde mit Laserpulsen und einer gepulsten Gatespannung bestimmt. Die Messung wird im Folgenden beschrieben.

## 7.4 Tunnelrate in den Quantenpunkt

Für diese Messung wird eine gepulste resonante Anregung des Übergangs des Exzitons zusammen mit einer gepulsten Gatespannung verwendet, siehe Abbildung 7.9(a). Die Gatespannung steuert hierbei das Tunneln des Elektrons. Die gepulste Laserintensität regelt den Einfang von Photoelektronen und ermöglicht gleichzeitig die Messung eines RF-Signals. Sie wurde so gewählt, dass auch ohne einen zweiten Laser Photoelektronen aus dem Rückkontakt erzeugt und im QP eingefangen werden können.

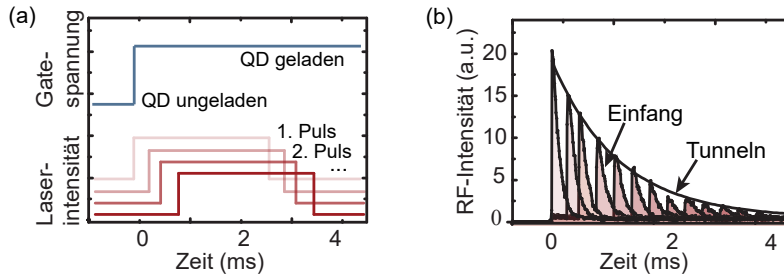


Abbildung 7.9: (a) Gepulste Gatespannung, die für die Messung der Tunnelrate angelegt wurde (blau). Bei der niedrigeren Spannung ist der QP unbeladen und bei der höheren Spannung wird der QP mit einem Elektron beladen. Laserintensität (rot) mit den unterschiedlichen Zeitabständen nach dem Gatespannungspuls. (b) Messung der zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz. In den schattierten Kurven wird der Einfang von Photoelektronen und in der schwarzen einhüllenden Kurve das Elektronentunneln gemessen.

Zuerst wird ein leerer QP präpariert, indem die Gatespannung  $V_G = 0\text{ V}$  angelegt wird. Diese Spannung liegt weit unterhalb der Tunnelspannung von  $0.47\text{ V}$  (Abbildung 7.2). Die Laserfrequenz wird so eingestellt, dass ein RF-Signal des exzitonen Übergangs bei  $V_2 = 0.525\text{ V}$  gemessen werden kann, bei der der QP im Gleichgewicht mit einem Elektron beladen ist. Bei  $t = 0$  wird die Gatespannung zu  $V_2$  umgeschaltet und der Übergang des Exzitons schiebt in Resonanz mit der Laserenergie, sodass in Abbildung 7.9(b) ein starkes RF-Signal beobachtet wird. Der exzitonen Übergang wird nun durch zwei Prozesse verhindert:

1. der Einfang von Photoelektronen und
2. das Elektronentunneln in den QP.

Der Einfang der Elektronen ist schneller als das Tunneln, sodass dieser Prozess in einem schnellen exponentiellen Abfall der RF-Intensität in den schattierten Kurven (für unterschiedliche Zeitabstände nach dem Gatespannungspuls) beobachtet wird.

Das Maximum der RF-Intensität für verschiedene Zeitabstände spiegelt die Wahrscheinlichkeit für ein getunneltes Elektron wieder. Das Tunneln findet auf einer langsameren Zeitskala statt als der Einfang. Außerdem findet das Elektronentunneln auch statt, wenn der Anregungslaser ausgeschaltet ist. Die RF-Amplitude beim Einschalten des Lasers ist also ein Maß für die Wahrscheinlichkeit, dass bis zu diesem Zeitpunkt ein Elektron in den QP getunnelt ist, somit

ist die Tunnelwahrscheinlichkeit durch die schwarze Kurve in Abbildung 7.9(b) gegeben. Es kann eine Tunnelrate von etwa  $1\text{ ms}^{-1}$  bestimmt werden, die gut mit der berechneten Tunnelrate in Abbildung 7.8 übereinstimmt.

### 7.5 Zusammengefasste Ergebnisse

Der Einfang von photogenerierten Elektronen aus dem Rückkontakt wurde zeitaufgelöst gemessen. Die Messung zeigt, dass auch in resonanten Messungen freie Ladungsträger erzeugt werden, die die optischen Eigenschaften der Übergänge im QP stören können.

- Die Einfangraten liegen im Bereich von Millisekunden, weshalb der Einfang in Proben mit größeren Tunnelraten nicht beobachtet wurde.
- Es konnte durch eine WKB-Näherung zur Bestimmung der Tunnelraten gezeigt werden, dass die eingefangenen Elektronen über Tunnelprozesse aus dem QP tunneln.
- Die Tunnelrate für das Elektronentunneln aus dem QP wurde mit Laserpulsen und einer gepulsten Gatespannung bestimmt.

# Stabilisierung der resonanten Fluoreszenz durch ein Lochgas

Freie Ladungsträger, die z. B. durch eine Auger-Rekombination oder den Photoeffekt in der Umgebung der QPe erzeugt werden, können zu einem Wandern der Resonanzfrequenz eines strahlenden Übergangs führen. Eine Möglichkeit, diese Schwankungen zu reduzieren, ist eine Rückkopplungsschleife, die aktiv gegen diese Schwankungen arbeitet. Hier kann z. B. eine externe Rückkopplungsschleife verwendet werden, die den Stark-Effekt ausnutzt um die Frequenz der Photonen zu stabilisieren. Außerdem kann die Rückkopplung durch einen internen Prozess erzeugt werden, bei dem die Kopplung des Elektron-Loch-Paares an die Umgebung ausgenutzt wird. Im Magnetfeld führt beispielsweise die Kopplung des Exzitons an den Nuklearspin im Rückkontakt zu einer Rückkopplung in der RF-Messung.<sup>1</sup> Diese Rückkopplung wird durch eine Polarisation des Kernspins erzeugt und kann benutzt werden, um die Emissionslinie zu stabilisieren.

In diesem Kapitel wird eine elektrische, interne Rückkopplungsschleife gezeigt, die möglicherweise zur Stabilisierung der QP-Resonanz eingesetzt werden kann.<sup>2,3</sup> Durch das Tunneln der resonant-erzeugten Ladungsträger aus dem QP entsteht ein Lochgas in der Probenstruktur. Dieses Lochgas ändert die energetische Lage der QP-Resonanz, sodass ein Mitführen<sup>4</sup> der Resonanz und eine Hysterese beobachtet werden. Die Auf- und Abbaupzeiten des Lochgases liegen im Bereich von Millisekunden. Die Messungen und Rechnungen in diesem Kapitel sind im Rahmen der von mir betreuten Masterarbeiten von Benjamin Merkel und Amran Al-Ashouri entstanden.

## 8.1 Mesa-Struktur

Die untersuchten QPe sind in eine Mesa-Struktur eingebettet. Diese Struktur wurde an der Technischen Universität Berlin entwickelt, um positionierte QPe zu wachsen.<sup>5</sup> Auf ein siliziumdotiertes GaAs-Substrat wurden hierzu 300 nm GaAs, 100 nm AlGaAs und 70 nm GaAs mit einer Dotierkonzentration von  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$  gewachsen. Danach wurden Zylinder mit unterschiedlichen Radien geätzt, siehe Abbildung 8.1. Im Folgenden wird eine Mesa mit einem Durchmesser von  $20 \mu\text{m}$  benutzt. Das AlGaAs wurde zu  $\text{AlO}_2$  oxidiert (Abbildung 8.1) bis ein schmaler Kanal AlGaAs zurückbleibt. Aufgrund

<sup>1</sup> Latta, C. et al., *Nat. Phys.* 5 (2009)

<sup>2</sup> Merkel, B., Magisterarb. (Universität Duisburg-Essen, 2015)

<sup>3</sup> Merkel, B. et al., *arXiv:1606.03215* (2016)

<sup>4</sup> Englisch: Dragging

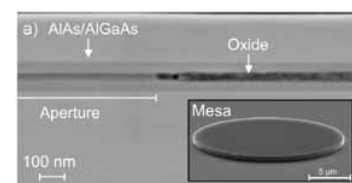


Abbildung 8.1: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahme der oxidierten Schicht. Die eingebettete Abbildung zeigt eine geätzte Mesa-Struktur, die die Bewegung der Ladungsträger in lateraler Richtung einschränkt (Strittmatter et al., 2012).

<sup>5</sup> Strittmatter, A. et al., *Phys. Stat. Sol. (a)* 209 (2012)

von Verspannungen, die dieser Kanal induziert, wachsen die QPe positioniert. Auf die oxidierte AlGaAs-Schicht wird eine Standard-Diodenstruktur, wie in Kapitel 3.1 beschrieben, gewachsen. Die Proben unterscheiden sich also durch die  $\text{AlO}_2$  Lage und die Mesa-Struktur von anderen in dieser Arbeit untersuchten Proben. Die Mesa-Struktur schränkt die laterale Bewegung der Ladungsträger in der QP-Umgebung ein.

## 8.2 Mitführen der Resonanz

In Abbildung 8.2 ist eine RF-Messung des Übergangs des Exzitons gezeigt, wenn die Resonanzenergie des QPs mit zunehmender (blau) und abnehmender Gatespannung (rot) im Verhältnis zur Anregungsfrequenz des Lasers geändert wird. Die Form der gemessenen Resonanz unterscheidet sich deutlich von der üblichen Form einer RF-Resonanz, wie sie vorher in Abbildung 3.10(b) erkennbar war. Sie ist um einen Faktor 40 breiter und besitzt eine starke Asymmetrie. Üblicherweise wird eine Linienbreite von etwa 0.5 GHz gemessen, hier hat die Resonanz eine Breite von circa 20 GHz. Das RF-Signal steigt bei den Gatespannung  $-0.05$  V und  $-0.04$  V abrupt an und fällt bei höheren Gatespannungen über  $-0.05$  V langsam ab. Es wird eine Hysterese mit einer Öffnung von circa 0.02 V (15 GHz) beobachtet. Aufgrund der starken Verbreiterung der beiden exzitonen Resonanzen kann die Feinstrukturaufspaltung des Exzitons nicht aufgelöst werden. Im Magnetfeld wird die Feinstrukturaufspaltung aufgrund der Zeemann-Aufspaltung größer. Bei einem Magnetfeld von 4.5 T sind die Linien um etwas 0.2 V getrennt, sodass die Form der Resonanz und die Hysterese an beiden Resonanzen beobachtet werden kann, siehe Abbildung 8.3.

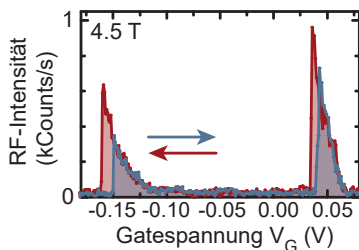


Abbildung 8.3: RF-Messung wie in Abbildung 8.2 in einem Magnetfeld von 4.5 T. Die beiden Resonanzen des Exzitons spalten aufgrund der Zeemann-Aufspaltung auf.

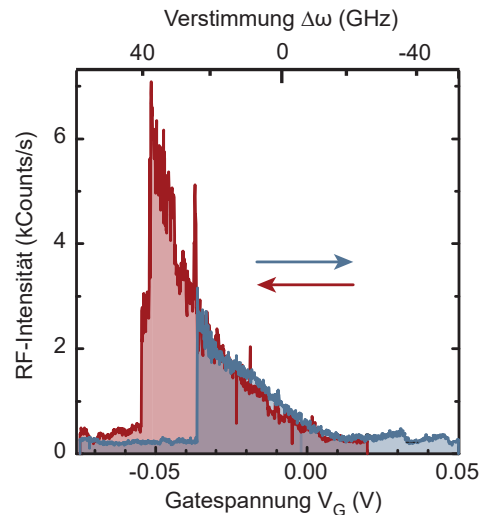


Abbildung 8.2: Resonanz des Übergangs des Exzitons in einer geätzten Mesa-Struktur mit einem Durchmesser von  $20 \mu\text{m}$ . Die Gatespannung wird steigend (blau) und absteigend (rot) durchgeführt. Die Resonanz steigt zwischen 0 und  $-0.05$  V langsam an und fällt dann abrupt ab. Es öffnet sich eine Hysterese zwischen den beiden Messkurven.

Die Linienbreite, die Asymmetrie und die Hysterese deuten auf ein Mitführen der Resonanz hin, wenn die Gatespannung geändert wird. Dieser Effekt kann durch einen dreistufigen Prozess erklärt werden, wie in Abbildung 8.4 gezeigt:

1. Durch die resonante optische Anregung werden Elektron-Loch-Paare (Exzitonen) mit der Rate  $\gamma_{abs}$  im QP erzeugt.
2. Die Exzitonen können durch das Feld ionisiert werden. Das Elektron tunnelt zum Rückkontakt und das Loch tunnelt zur Grenzfläche zwischen GaAs und AlGaAs (blau in Abbildung 8.4). Ein zweidimensionales Lochgas (2DHG)<sup>6</sup> bildet sich mit der Rate  $\gamma_{Pump}$  an dieser Grenzfläche.
3. Die gespeicherten Löcher werden durch Tunneln durch die (AlGa)As-Barriere mit der Rate  $\gamma_{Leck}$  langsam abgebaut.

Für eine feste Laserleistung kann eine gewisse Zahl an Ladungen an der Grenzfläche angesammelt werden. Die Ladungen beeinflussen das elektrische Feld am QP, d.h. die Resonanz wird leicht im Verhältnis zur Laserfrequenz verschoben. Die Energien des Exzitons in Abhängigkeit von der Anzahl der Löcher  $n$  im 2DHG sind in Abbildung 8.5 dargestellt. Mit jedem Loch, das in das Lochgas gepumpt wird, steigt die Rekombinationsenergie des Exzitons und damit auch die Resonanzfrequenz des exzitonenischen Übergangs (die Resonanz wird zu kleineren Gatespannungen verschoben).

### 8.3 Rückkopplungsschleife

Diese Rückkopplungsschleife kann die Linienbreite, die Form der Resonanz und die Hysterese erklären. Bei der roten Messkurve in Abbildung 8.2 wird die QP-Resonanz zu kleineren Gatespannungen verschoben, wenn das Lochgas befüllt wird (siehe Abbildung 8.6). Dies vermindert den Überlapp der Resonanz des Exzitons mit der Laserenergie und damit die Pumpeffizienz der Löcher. Die Absorption der Resonanz nimmt zu, wenn die Gatespannung reduziert wird. Je größer die Absorption der Resonanz ist, desto mehr Löcher werden in das Lochgas gepumpt und desto weiter wird die Resonanz zu negativen Gatespannungen verschoben. Am Maximum der Resonanz ist auch das Maximum der Verschiebung erreicht. Die Anzahl der Löcher im Lochgas nimmt bei einer Verminderung der Gatespannung wieder ab und die Position der Resonanz verschiebt sich zu größeren Gatespannungen. Bei einer Gatespannung von  $-0.05$  V wird es zu einer positiven Rückkopplung kommen, welche den abrupten Abfall des RF-Signals erklärt.

Nun wird die Messung mit zunehmender Gatespannung (blaue Messung in Abbildung 8.2) genauer betrachtet. Das RF-Signal wird erst bei kleinerer Verstimmung zwischen Laser und QP-Resonanz gemessen. Sobald der exzitonenische Übergang des QPs in Resonanz mit dem Laser ist, wird das Lochgas befüllt und die Resonanz des QPs zur

<sup>6</sup> Englisch: Two-dimensional hole gas

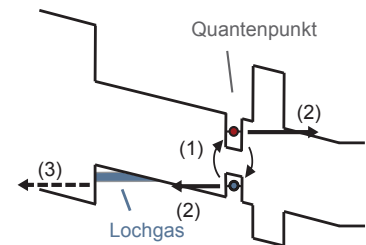


Abbildung 8.4: Bandstruktur der Probe mit den unterschiedlichen Prozessen, die zum Mitführen der Resonanz führen. (1) Resonante Anregung eines Elektron-Loch-Paares, (2) Ionisation des Exzitons, (3) Entleeren des Lochgases.

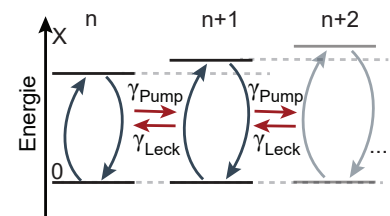


Abbildung 8.5: Verschieben der Resonanz durch das Befüllen des Lochgases. Die Energien des leeren QPs und des Exzitons verändern sich, wenn die Besetzung des Lochgases von  $n$  auf  $n+1$  und  $n+2$  zunimmt. Die Besetzung des Lochgases nimmt mit der Pumprate  $\gamma_{Pump}$  zu und mit der Leckrate  $\gamma_{Leck}$  ab.



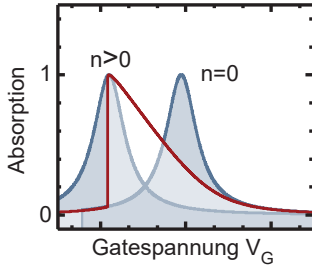


Abbildung 8.6: Verschieben der Resonanz durch das Befüllen des Lochgases.

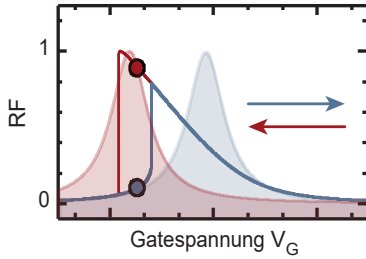


Abbildung 8.7: Zwei Resonanzen des QPs für unterschiedliche Lochgasbesetzungen, wenn das Lochgas gefüllt ist (rote Resonanz) und wenn das Lochgas leer ist (blaue Resonanz). Das Signal der resonanten Fluoreszenz kann für eine Gatespannung zwei unterschiedliche Intensitäten annehmen (roter und blauer Punkt).

<sup>7</sup> Merkel, B., Masterarbeit. (Universität Duisburg-Essen, 2015)

Laserenergie verschoben, bis eine stabile Situation zwischen Lochgasgeneration und -abbau erreicht ist. Wird die Gatespannung weiter erhöht, verringert sich die Zahl der Löcher im Lochgas und die Resonanz des QPs wird zu größeren Gatespannungen verschoben. Die Messung folgt dann dem Verlauf der roten Messdaten in Abbildung 8.2.

Im Bereich der Hysterese gibt es zwei stabile Einstellungen, wie in Abbildung 8.7 gezeigt. Nähert man sich der Resonanz mit aufsteigender Gatespannung (blaue Kurve), ist das Lochgas unbesetzt und die Absorption der nicht-verschobenen Resonanz des Exzitons ist klein (blauer Punkt in Abbildung 8.7). Eine positive Rückkopplung kann wegen der geringen Pumpeffizienz nicht stattfinden. Nähert man sich hingegen mit absteigender Gatespannung (rote Kurve), wird das Lochgas gefüllt, während die Resonanz mitgeführt wird. Im Bereich der Hysterese erreicht die Resonanz eine hohe Absorption (roter Punkt in Abbildung 8.7) und damit eine hohe Pumpeffizienz des Lochgases.

#### 8.4 Ratengleichungen

Die beobachtete Hysterese und Asymmetrie können wiederum mit Ratengleichungen modelliert werden. Die Anzahl der Löcher im Lochgas ist durch die Pumprate  $\gamma_{Pump}$  des Lochgases und die Leckrate  $\gamma_{Leck}$  der Löcher aus dem Lochgas gegeben. Es ergibt sich für die mittlere Besetzung des Lochgases  $n_h$ :

$$\partial_t n_h = \gamma_{Pump} - \gamma_{Leck} n_h. \quad (8.1)$$

Die Pumprate der Löcher in das Lochgas hängt von der Anzahl der Elektron-Loch-Paare ab, die im QP erzeugt werden. Diese ist durch die Wahrscheinlichkeit für die Besetzung des oberen Zustandes in einem Zwei-Niveau-System  $n(n_h)$  und die Lebensdauer der Elektron-Loch-Paare  $\gamma_{Sp}$  gegeben. Die Besetzungswahrscheinlichkeit des QPs mit einem Elektron-Loch-Paar wird hier durch eine Lorentz-Kurve mit der Breite der Resonanz  $w$  angenähert:

$$n(n_h) = \frac{1}{2} \frac{(w/2)^2}{(\Delta\omega - \delta\omega(n_h))^2 + (w/2)^2}. \quad (8.2)$$

Aus der Anzahl der Löcher  $n_h$  kann die energetische Verschiebung der Resonanz mit  $\delta\omega = \delta\omega_{1h} n_h$  berechnet werden.  $\delta\omega_{1h}$  entspricht der Verschiebung der Resonanz, die durch ein einzelnes Loch verursacht wird. Die Elektron-Loch-Paare im QP werden mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit  $P_{Ion}$  ionisiert. Diese Wahrscheinlichkeit hängt von den Tunnelraten der Elektronen und Löcher aus dem QP und der Rekombinationsrate des exzitonischen Übergangs ab. Die Tunnelraten können über die Probenstruktur eingestellt werden. Für die mittlere Population des Lochgases ergibt sich:

$$\partial_t n_h = 2\gamma_{Sp} n(n_h) P_{Ion} - \gamma_{Leck} n_h. \quad (8.3)$$

Für Gleichung 8.3 können sich drei Lösungen ergeben, die zusammen in Abbildung 8.8 dargestellt sind.



Der Bereich der Hysterese in den RF-Messungen entspricht dem Überlappbereich, in dem drei stationäre Lösungen für eine feste Verstimmung möglich sind. Nur zwei der Lösungen sind stabil, was mit den beiden Messungen mit aufsteigender und absteigender Gatespannung übereinstimmt. Ein Umschalten tritt auf, wenn die Grenzen des Überlappbereichs erreicht werden, welche durch den roten und blauen Punkt markiert werden. In Abbildung 8.8 ist die stationäre Lösung von Gleichung 8.1 zusammen mit den Messungen für aufsteigende und absteigende Gatespannungen dargestellt. Für zunehmende Spannungen (blaue Messkurve) nimmt das RF-Signal abrupt zu, wenn der blaue Punkt auf der berechneten Kurve (schwarz) erreicht ist und folgt danach dem Verlauf der theoretischen Kurve. Mit abnehmender Gatespannung (rote Messkurve) schiebt der exzitonische Übergang des QPs sofort aus der Resonanz mit dem Anregungslaser, sobald der rote Punkt erreicht ist.

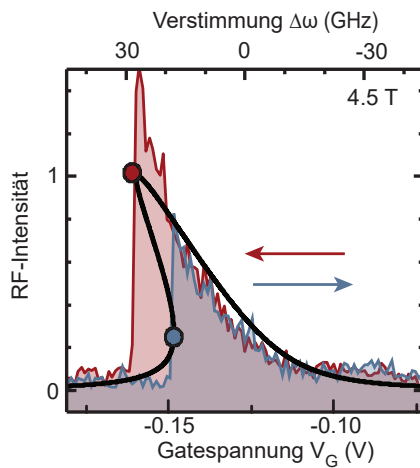


Abbildung 8.8: Ratengleichungsmodell (schwarze Linie) mit den Messungen für steigende (blau) und fallende (rot) Gatespannung. Die Messungen stimmen gut mit der Rechnung überein (nach Merkel *et al.*, 2016).

Ob ein Mitführen der Resonanz und eine Hysterese beobachtet werden kann, hängt stark von den einzelnen Raten in der Probenstruktur ab. Die Raten für das Befüllen des Lochgases  $\gamma_{\text{Pump}}$  und die Rate für den Abbau des Lochgases  $\gamma_{\text{Leck}}$  geben die Zahl der Löcher im QP und damit die maximal mögliche Besetzung des Lochgases bzw. die maximale Verschiebung der Resonanz  $\delta\omega_{\text{max}}$ . Außerdem wird die Form der Resonanz von der Linienbreite beeinflusst. Die Resonanzen sind in Abbildung 8.9 für verschiedene Verhältnisse zwischen der Halbwertsbreite  $w$  und der maximalen Verschiebung durch das Lochgas  $\delta\omega_{\text{max}}$  berechnet worden. Ist die Linienbreite etwa 4 mal größer als die maximale Verschiebung, kann nur ein kleiner Effekt auf die Linienform beobachtet werden und die Linie wird leicht asymmetrisch. Wird die Besetzung des Lochgases so weit erhöht, bis die maximale Verschiebung der Linienbreite entspricht, wird die Resonanz asymmetrischer und es öffnet sich eine Hysterese. Die Hysterese wird ausgeprägter, je größer die maximale Verschiebung durch das Lochgas im Verhältnis zu Linienbreite wird. Es gibt also verschiedene Para-

meter, wie Mesa-Größe und Tunnelraten, über die das Hystereseverhalten der Resonanz eingestellt werden können. Durch die Mesa wird die laterale Bewegung der Ladungsträger eingeschränkt, weshalb die Mesa-Größe ein wichtiger Parameter für die Anzahl der Löcher, die zur Verschiebung der Resonanz beitragen, ist.

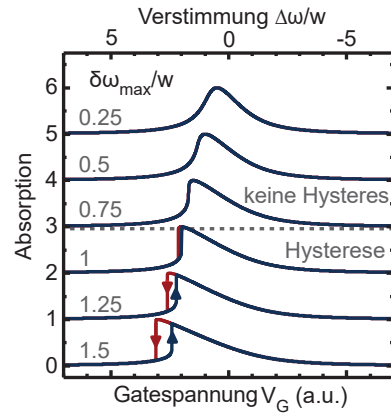


Abbildung 8.9: Resonanzform aus den Ratengleichungen für unterschiedliche Verhältnisse zwischen Linienbreite  $w$  und maximaler Verschiebung  $\delta\omega_{\max}$ . Bei einem Verhältnis  $\delta\omega_{\max}/w = 0.25$  bildet sich kein Lochgas und die Linienform entspricht einem Lorenz. Je größer das Verhältnis  $\delta\omega_{\max}/w$  wird, desto asymmetrischer wird die Kurve und es öffnet sich die Hysterese (nach Merkel *et al.*, 2016).

<sup>8</sup> Latta, C. *et al.*, *Nat. Phys.* 5 (2009)

<sup>9</sup> Högele, A. *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 108 (2012)

<sup>10</sup> Chekhovich, E. *et al.*, *Nat. Mater.* 12 (2013)

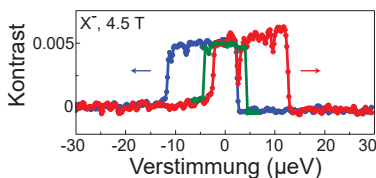


Abbildung 8.10: Resonante Fluoreszenz des trionischen Übergangs bei einem Magnetfeld von 4.5 T. Es wird eine Mitführen der Resonanz und eine Hysterese, aufgrund einer Polarisierung des Kern-Spin-Bades, beobachtet (nach Latta *et al.*, 2009).

Soweit gibt es einige Ähnlichkeiten zu einer Messung von Latta *et al.*,<sup>8</sup> der ein Mitführen der exzitonischen und trionischen Resonanz, aufgrund einer Polarisierung des Kern-Spin-Bades, beobachtet hat. Diese Messung ist in Abbildung 8.10 gezeigt, hier wurde die Resonanz des trionischen Übergangs von einer blau Verstimmung zu einer rot Verstimmung (rote Messdaten) und andersherum (blaue Messdaten) in einem Magnetfeld von 4.5 T abgetastet. Eine Polarisierung des Kern-Spin Bades durch die resonante Anregung führt zu einer Änderung des Overhauser-Feldes, folglich wird die energetische Lage der Resonanz durch das interne Magnetfeld geändert und die Resonanz wird bei einer Änderung der Verstimmung mitgeführt. Dieses Kern-Spin-Mitführen<sup>9,10</sup> wird als ein breites Plateau in der Intensität des Übergangs und einer Hysterese in Abbildung 8.10 beobachtet. Der in der vorliegenden Arbeit untersuchte Rückkopplungsmechanismus basiert jedoch auf Photoionisation im elektrischen Feld und nicht auf einer magnetischen Wechselwirkung mit den Kernspins, was die Antwort des Systems um Größenordnungen schneller macht und eine schnelle Manipulation mit einem externen elektrischen Feld oder einem Lichtpuls erlaubt. Dies wird im Folgenden gezeigt.

## 8.5 Ein- und Ausschaltzeiten

Nun werden die Zeiten bestimmt, mit denen das Lochgas an der Grenzfläche auf- und abgebaut werden kann. Das RF-Signal wird hierfür im Bereich der Hysterese unter dem Einfluss einer gepulsten Laseranregung untersucht.

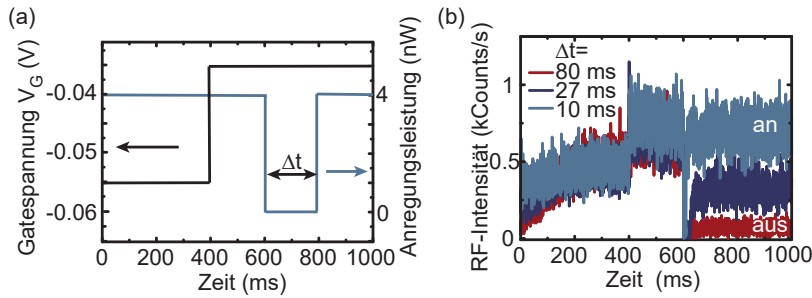


Abbildung 8.11: Zeitaufgelöste RF-Messungen der Abbauzeit des Lochgases. (a) Gatespannungen und Laserintensitäten, die für die Messungen eingestellt werden. (b) Es wird eine Gatespannung im Bereich der Hysterese angelegt. Der QP wird so präpariert, dass er sich im An-Zustand befindet. Der Laser wird, bei  $t = 600$  ms, für verschiedene Zeiten  $\Delta t$  ausgeschaltet. Nachdem der Laser wieder eingeschaltet wird, befindet sich der QP mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit im An- (hellblaue Messung) oder Aus-Zustand (rote Messung).

Zunächst wird die Zeit bestimmt, in der das Lochgas abgebaut werden kann. Der QP wird mit der Gatespannung und der Laseranregung so präpariert, dass er sich im An-Zustand (es wird RF des QPs beobachtet) befindet und sich das Lochgas aufbauen kann. Die entsprechenden Anregungsleistungen und Gatespannung sind in Abbildung 8.11(a) dargestellt. Bei  $t = 400$  ms wird die Gatespannung zu einer Spannung im Bereich der Hysterese umgeschaltet. Nach etwa 200 ms, zur Stabilisierung, wird der Laser für eine kurze Zeit  $\Delta t$  ausgeschaltet. In dieser Zeit fließen Ladungen aus dem Lochgas ohne Nachfüllen ab, sodass sich das Lochgas abbaut. Nachdem der Laser wieder eingeschaltet wird, befindet sich der QP mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit  $P_{\text{an}}$  im An-Zustand. In diesem Fall konnte das Lochgas nicht so weit abgebaut werden, dass der exzitonische Übergang des QPs nicht mehr in Resonanz mit dem Laser ist. Mit der Wahrscheinlichkeit  $1 - P_{\text{an}}$  ist der QP im Aus-Zustand, d. h. das Lochgas ist so weit abgebaut, dass sich der exzitonische Übergang des QPs nicht mehr in Resonanz mit dem Laser befindet.

In Abbildung 8.11(b) sind drei Messungen für unterschiedliche Zeiten  $\Delta t$  dargestellt. Die hellblau dargestellten Messdaten zeigen das RF-Signal, wenn der Laser 10 ms ausgeschaltet wurde. Bis  $t = 600$  ms steigt das RF-Signal an und der QP wird präpariert, sodass er sich im An-Zustand befindet. Bei  $t = 600$  ms wird der Laser für 10 ms ausgeschaltet und es wird kein RF-Signal beobachtet. Danach wird der Laser wieder eingeschaltet und das RF-Signal steigt wieder an, der QP befindet sich im An-Zustand. Bei der roten Messung wurde der Laser 80 ms ausgeschaltet. Nach Einschalten des Lasers kann der Übergang des QPs nicht mehr angeregt werden, sodass sich der QP im Aus-Zustand befindet.

Die Messung wird für verschiedene Zeiten  $\Delta t$  wiederholt. Für jede Zeit  $\Delta t$  wird die Wahrscheinlichkeit den QP im An- oder Aus-Zustand zu finden bestimmt, siehe Abbildung 8.12. Wenn der Laser etwa 22 ms ausgeschaltet war, ist der QP mit einer Wahrscheinlichkeit von 50 Prozent im An-Zustand. Es dauert circa 22 ms bis das Lochgas soweit abgebaut ist, dass die Resonanz des QPs von der Laseranre-

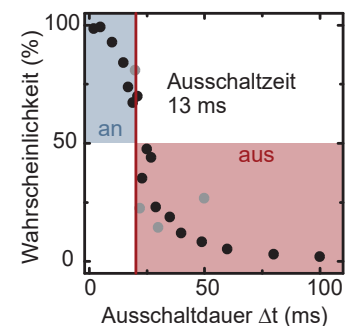


Abbildung 8.12: Wahrscheinlichkeit den QP im An-Zustand zu finden, nachdem der Laser für unterschiedliche Zeiten  $\Delta t$  ausgeschaltet wurde. Es ergibt sich eine Ausschaltzeit von 22 ms.

gung weggeschoben ist.

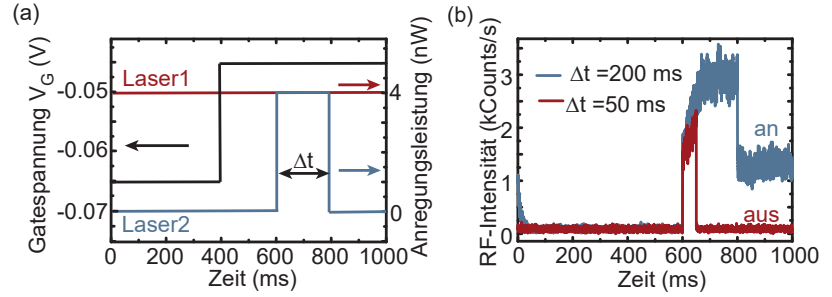


Abbildung 8.13: Zeitaufgelöste RF-Messung der Aufbauzeit des Lochgases. (a) Gatespannungen und Laserintensitäten, die für die Messungen eingestellt werden. (b) Der QP wird mit zwei Lasern unterschiedlicher Frequenz beleuchtet. Die Frequenz des ersten Lasers liegt im Bereich der Hysterese (siehe auch Abbildung 8.14). Die Frequenz des zweiten Lasers regt den exzitonen Übergang im QP resonant an. Der QP wird so präpariert, dass er sich im aus-Zustand befindet. Bei  $t = 600$  ms wird der zweite Laser für unterschiedliche Zeiten  $\Delta t$  eingeschaltet. Nachdem der Laser wieder ausgeschaltet wurde, befindet sich der QP mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit im An- oder Aus-Zustand.

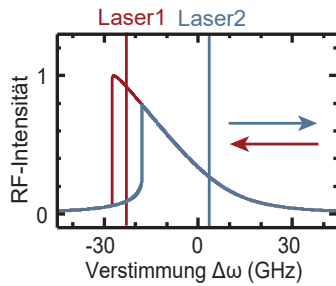


Abbildung 8.14: Frequenzen der beiden Laser, die für die Messung der Einschaltzeiten benutzt wurden.

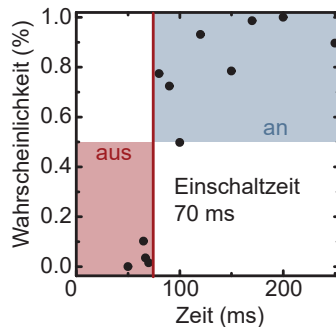


Abbildung 8.15: Wahrscheinlichkeit den QP im An-Zustand zu finden, nachdem ein zweiter Laser für unterschiedliche Zeiten  $\Delta t$  eingeschaltet wurde. Es ergibt sich eine Einschaltzeit von 70 ms.

Ähnlich kann die resonante Fluoreszenz des QPs mit optischen Pulsen und zwei Lasern eingeschaltet werden. Die Frequenz des ersten Lasers wird in den Bereich der Hysterese gesetzt (rote Linie in Abbildung 8.14), sodass der QP im Aus-Zustand ist. Nun wird für kurze Zeit  $\Delta t$  ein zweiter Laser eingeschaltet (Abbildung 8.13 blaue Linie), der in Resonanz mit dem exzitonen Übergang ist (blaue Linie in Abbildung 8.14). Hierdurch wird das Lochgas gefüllt und die Gatespannung der Resonanz des QPs nimmt ab. Abhängig von der Länge des Pulses wird der exzitonen Übergang des QPs nach dem Puls in Resonanz mit Laser 1 und damit im An- oder Aus-Zustand sein.

In Abbildung 8.13 werden zwei Messungen mit unterschiedlichen Zeiten  $\Delta t$  gezeigt. Die blau dargestellte Messung zeigt die RF-Intensität des QPs, wenn der zweite Laser für 200 ms eingeschaltet wurde. Nachdem der Laser ausgeschaltet wird, ist das RF-Signal des QPs mit 1000 Photonen pro Sekunde zu sehen, d. h. der QP befindet sich im An-Zustand. In der Messung, die in Abbildung 8.13 rot dargestellt ist, wurde der zweite Laser für 50 ms eingeschaltet. Nach dem Ausschalten des Lasers wird kein RF Signal gemessen, d. h. der QP ist im Aus-Zustand.

Die Messung wird für unterschiedliche Zeiten  $\Delta t$  wiederholt. Die Wahrscheinlichkeit den QP im An-Zustand zu messen wird über die Zeit  $\Delta t$  aufgetragen (Abbildung 8.15). Nachdem der Laser für eine Zeit  $\Delta t = 70$  ms angeschaltet wurde, befindet sich der QP mit einer Wahrscheinlichkeit von 50 Prozent im An-Zustand. Es dauert etwa 70 ms bis das Lochgas so weit gefüllt ist, dass die Resonanz des Exzitons im Bereich der Hysterese angeregt werden kann.

## 8.6 Rückkopplungsschleife an QP-Strukturen ohne $\text{AlO}_2$ -Schicht

Bis hierhin wurde das Mitführen der Resonanz in Proben mit einer zusätzlichen Oxidschicht, 2 Wachstumsschritten und induzierten

(positionierten) QPen beobachtet.<sup>11,12</sup> Im Folgenden wird gezeigt, dass diese zusätzlichen Präparationsschritte und deren Einfluss auf die Probenstruktur nicht notwendig sind, um die transienten Phänomene zu beobachten. Ein Mitführen der Resonanz kann auch in QPen beobachtet werden, die nicht positioniert wurden. Hierfür wird die in Kapitel 5 verwendete Probe geätzt,<sup>13</sup> sodass eine Mesa-Struktur entsteht. Die Mesa besitzt ebenfalls einen Durchmesser von  $20\text{ }\mu\text{m}$ , entsprechend wird die Bewegung der Ladungsträger in lateraler Richtung eingeschränkt.

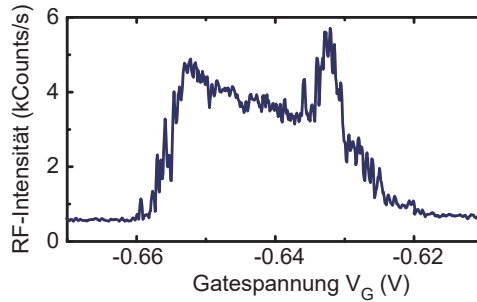


Abbildung 8.16: Resonanz des exzitonen Übergangs in einem QP, der in einer Mesa-Struktur eingebettet ist. Die Resonanz ist asymmetrisch und verbreitert.

In einer RF-Messung am exzitonen Übergang wird ein Mitführen der Resonanz beobachtet, wenn sie mit der Gatespannung abgetastet wird, siehe Abbildung 8.16. Die Linienform der exzitonen Resonanz ist asymmetrisch, aber es wird keine Hysterese gemessen. Dies kann durch das Verhältnis zwischen der maximalen Verschiebung der Resonanz,  $\delta\omega_{\text{max}}$ , und der Linienbreite der Resonanz,  $w$ , erklärt werden (Abbildung 8.9).

Bei einer Gatespannung von  $-0.632\text{ V}$  wird die zweite Resonanz des Exzitons gemessen, welche kaum durch die Gatespannung mitgeführt wird. An diesem QP wurde beobachtet, dass das Mitführen der Resonanz stark von dem gemessenen Gatespannungsbereich abhängt. Dies könnte durch eine Änderung der Tunnelrate der Löcher aus dem QP mit der Gatespannung erklärt werden.

### 8.6.1 Stabilisierung der exzitonen Resonanz

Im Folgenden wird eine zeitaufgelöste RF-Messung benutzt, um die Stabilisierung der exzitonen Resonanz durch die Rückkopplungsschleife zu zeigen. An das Gate wird eine externe Störung durch eine gepulste Gatespannung mit den Gatespannungen  $V_1$  und  $V_2$  und einer Amplitude von  $2\text{ mV}$  angelegt. Bei diesen Spannungen wird der Übergang auf der langsam ansteigenden Flanke der Resonanz angeregt, Abbildung 8.17. Die Gatespannung ändert die Verstimmung zwischen der Energie der exzitonen Resonanz und der Laserenergie. Somit ändert sich auch die Absorption des exzitonen Übergangs und damit die Besetzung des Lochgases. Die Auswirkung der Rückkopplungsschleife ist in Abbildung 8.18 gezeigt und wird im Folgenden näher beschrieben.

Bei  $t = 0$  wird die Gatespannung von  $V_1$  zu  $V_2$  gewechselt.

<sup>11</sup> Bakker, M. P. *et al.*, *Phys. Rev. B* **91** (2015)

<sup>12</sup> Merkel, B. *et al.*, *arXiv:1606.03215* (2016)

<sup>13</sup> Probe BO14560 (siehe Kapitel 3.1)

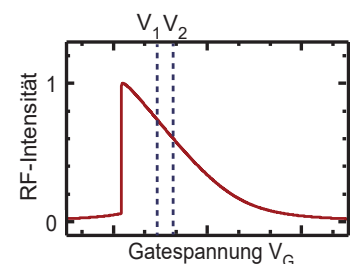


Abbildung 8.17: Gatespannungen  $V_1$  und  $V_2$ , die für die Messung der Stabilisation angelegt werden.

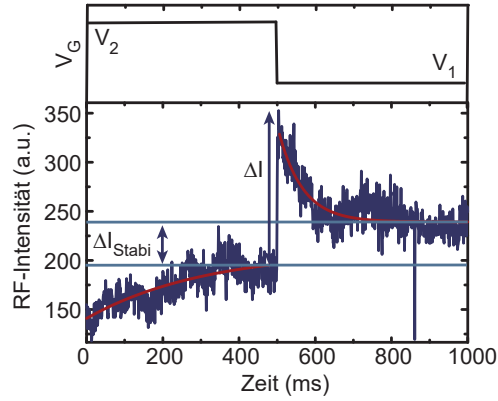


Abbildung 8.18: Zeitaufgelöste Messung der Stabilisation der exzitonischen Resonanz. Bei  $t = 0$  wird die Gatespannung von  $V_1$  zu  $V_2$  gewechselt, die Stabilisation wird als exponentielle Zunahme des RF-Signals beobachtet. Bei  $t = 500$  ms wird die Gatespannung von  $V_2$  zu  $V_1$  gewechselt und die Stabilisation wird als exponentielle Abnahme des RF-Signals beobachtet. Die Intensitätsänderung ohne Stabilisation ist als  $\Delta I$  und mit Stabilisation als  $\Delta I_{\text{Stabi}}$  eingezeichnet.

Die Absorption der exzitonischen Resonanz nimmt durch den Spannungswechsel ab, siehe Abbildung 8.19 (blaue Resonanz). Damit nimmt auch die Besetzung des Lochgases ab, sodass auch die Position der Resonanz zu höheren Gatespannungen verschiebt, siehe Abbildung 8.19(b). Diese Verschiebung wird als exponentielle Zunahme der RF-Intensität in Abbildung 8.18 zwischen  $t = 0$  und  $t = 500$  ms gemessen. Das RF-Signal sättigt, wenn die Intensität der mitgeführten Kurve erreicht ist (rot in Abbildung 8.19(b)).

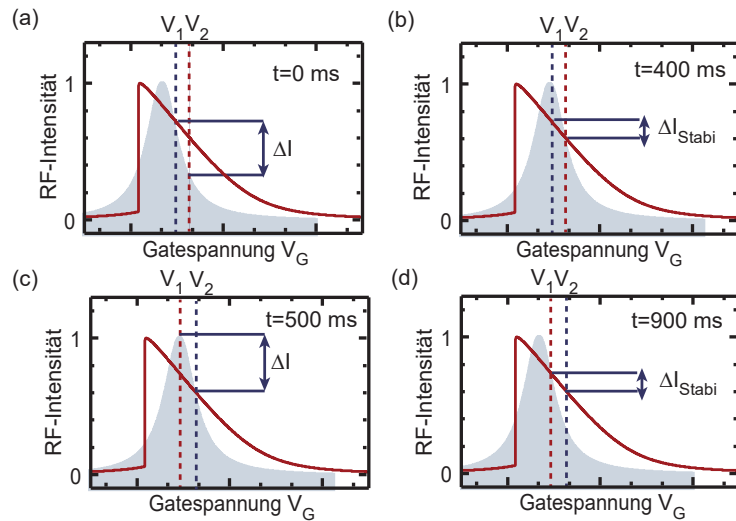


Abbildung 8.19: Schematische Darstellung der QP-Resonanz (blau) und des RF-Signals (rot) während der Stabilisationsmessung. (a) Die Gatespannung wird von  $V_1$  zu  $V_2$  gewechselt, sodass sich die Absorption der blauen Resonanz um  $\Delta I$  vermindert. (b) Durch das Lochgas ändert sich die Position der blauen Resonanz und damit das RF-Signal. (c) Die Gatespannung wird von  $V_2$  zu  $V_1$  gewechselt und die Absorption der blauen Resonanz erhöht sich. Die Resonanz verschiebt sich durch den Aufbau des Lochgases (d) und die Intensitätsänderung ist durch  $\Delta I_{\text{Stabi}}$  gegeben.

Bei  $t = 500$  ms wird die Gatespannung von  $V_2$  zu  $V_1$  gewechselt. Die RF-Intensität des exzitonischen Übergangs nimmt um  $\Delta I$  zu, weil

die Resonanz näher an der maximalen Absorption angeregt wird, siehe Abbildung 8.19(c). Das Lochgas an der Grenzfläche wird gefüllt, sodass die energetische Lage der Resonanz zu kleineren Gatespannungen verschoben wird. Das Befüllen des Lochgases und die Verschiebung werden als exponentielle Abnahme des RF-Signals zwischen 500 und 1000 ms in Abbildung 8.18 beobachtet. Die Resonanz verändert ihre energetische Position bis die RF-Intensität mit der mitgeführten Kurve übereinstimmt, siehe Abbildung 8.19(d). Die Intensitätsänderung des RF-Signals  $\Delta I_{Stabi}$  zwischen den beiden verschobenen Resonanzen ist kleiner als die Intensitätsänderung  $\Delta I$  ohne die Stabilisierung durch das Lochgas. Die Intensitätsänderung der nicht-verschobenen Resonanz  $\Delta I$  ist in Abbildung 8.18 etwa 3 mal größer als die Änderung der Intensität der verschobenen Resonanz  $\Delta I_{Stabi}$ . Diese Messung bestätigt eine Stabilisierung der RF-Intensität mit einer Zeitkonstante von 100 ms. Die Geschwindigkeit reicht nicht aus, um Ladungs- oder Spinfluktuationen zu stabilisieren. Sie kann jedoch in zukünftigen Arbeiten durch die Anregungsleistung, Tunnelraten und Mesa-Größen eingestellt werden.

### 8.7 Zusammengefasste Ergebnisse

Eine Rückkopplungsschleife durch die resonante Anregung des QPs und die Bildung eines Lochgases wurde untersucht.

- Es wurde ein Mitführen der Resonanz des Exzitons und eine Hysterese aufgrund dieses Effekts gemessen.
- Die Messungen konnten durch Ratengleichungen beschrieben werden.
- Ein- und Ausschaltzeiten im Bereich von Millisekunden wurden gemessen.
- Die Rückkopplungsschleife wird auch in QP-Strukturen ohne  $\text{AlO}_2$  beobachtet.
- Erste Messungen zur Stabilisierung der Resonanz mit einer Zeitkonstante von 100 ms wurden gezeigt.





# Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde die resonante Fluoreszenz an einzelnen selbstorganisierten QPen verwendet, um die Ladungsträgerdynamik in *einzelnen* selbstorganisierten QPen zu untersuchen. Im ersten Teil wurden zunächst die Grundlagen erläutert und der optische Messaufbau gezeigt. Im zweiten Teil dieser Arbeit wurde das Tunneln zwischen einem selbstorganisierten QP und einem Ladungsreservoir, sowie der Einfluss der optischen Anregung auf diese Dynamik genauer studiert. Im dritten Teil konnte mithilfe der resonanten Fluoreszenz die Auger-Rekombination in einem selbstorganisierten QP erstmals nachgewiesen werden. Außerdem wurde gezeigt, dass durch die resonante Anregung freie Elektronen in der QP-Umgebung erzeugt werden, die in den QP relaxieren können. Abschließend wurde im letzten Kapitel eine interne Rückkopplungsschleife demonstriert, die zur Stabilisierung der Resonanz benutzt werden kann.

## 9.1 Tunneldynamiken in resonanter Fluoreszenz

Das Tunneln von einzelnen Elektronen zwischen einem *einzelnen* selbstorganisierten QP und einem Ladungsreservoir konnte erstmals zeitaufgelöst untersucht werden. Hierbei diente die resonante Fluoreszenz als Detektor für den Beladungszustand des QPs, wobei Tunnelraten im Bereich von Mikrosekunden und ein Einfluss der resonanten optischen Anregung auf die Tunneldynamik gezeigt wurden. Die Laseranregung führt zu einer optischen Blockade für das Elektronentunneln in den QP durch Veränderung des Entartungsgrades des QP-Niveaus, aufgrund einer Exzitonenbesetzung. Diese optische Blockade ermöglicht eine gezielte Regulierung der Tunnelraten.

Die optische Detektion des Beladungszustandes ermöglichte darüber hinaus die Messung einzelner Quantensprünge für das Elektronentunneln zwischen einem einzelnen QP und einem Ladungsreservoir in einer zeitaufgelösten Messung. Zu jedem Zeitpunkt wurde beobachtet, ob sich das Elektron im QP oder im Reservoir befindet, so dass mithilfe einer Zählstatistik erstmals eine Coulomb-Blockade im Einzelelektronentunneln (Fano-Faktor  $F < 1$ ) zwischen einem selbstorganisierten QP und einem Ladungsreservoir gemessen wurde.

*Ausblick:* Genauere Untersuchungen der Schwankungsbreiten des Telegraphenrauschens in der Zählstatistik ermöglichen detaillierter Untersuchungen der Korrelationen im Elektronentunneln. Eine Mög-

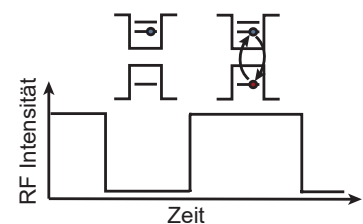


Abbildung 9.1: Zeitaufgelöste RF-Intensität des Exzitons. Das RF-Signal ist aus, wenn ein Elektron in den QP getunnelt und man beobachtet Schrottrauschen.

<sup>1</sup> Stegmann, P. et al., *Phys. Rev. B* **92** (2015)

<sup>2</sup> Kambly, D. et al., *Phys. Rev. B* **83** (2011)

<sup>3</sup> Kambly, D. et al., *J. Comput. Electron.* **12** (2013)

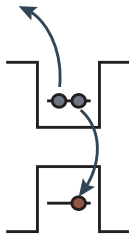


Abbildung 9.2: Auger-Rekombination in einem selbstorganisierten QP. Die Rekombinationsenergie eines Elektron-Loch-Paares wird auf ein weiteres Elektron übertragen und dieses aus dem QP emittiert.

lichkeit bietet hier die Untersuchung des Rauschens im Magnetfeld in Kombination mit einer Auswertung mittels (generalisierten) faktoriellen Kumulanten.<sup>1,2,3</sup>

## 9.2 Ladungsträger-Einfang und -Emission unter resonanter Anregung

### 9.2.1 Auger-Rekombination und Einfang von Photoelektronen

In dieser Arbeit wurde die Emission (Auger-Rekombination) und der Einfang von Ladungsträgern unter resonanter Anregung untersucht. Der Einfang von photogenerierten Elektronen in einen QP wurde in einer zeitaufgelösten RF-Messung am exzitonen Übergang beobachtet. Durch das Beleuchten der Probe konnten im Rückkontakt freie, energetisch angeregte Elektronen erzeugt werden. Diese können in den QP relaxieren, sodass die RF-Intensität des Exzitons in Proben mit schwacher Tunnelkopplung zum Ladungsträgerreservoir reduziert wird.

Mit der zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz konnte erstmals die Auger-Rekombination eines trionischen Zustandes in einem einzelnen selbstorganisierten QP gemessen werden. Im Verhältnis zu kolloidalen QPen wurde eine sehr kleine Auger-Rate von 500 ns in der Größenordnung der Tunnelzeit bestimmt. Es wurde gezeigt, dass der Auger-Zeit und das Elektronentunneln konkurrierende Prozesse sind, die die optischen Eigenschaften der resonanten Fluoreszenz bestimmen. Neben einer Verringerung der RF-Intensität aufgrund der Auger-Rekombination wurde außerdem eine Verbreiterung der trionischen Resonanz um mehr als einen Faktor zwei gemessen.

*Ausblick:* Von kolloidalen QPen ist bekannt, dass eine Reihe von verschiedenen Eigenschaften des Nanopartikels und der Umgebung die Auger-Rekombination beeinflussen, insbesondere Größe, Form, Hülle und Kopplung an Oberflächenzustände. Eine detaillierte Untersuchung dieser externen und internen Eigenschaften wurde für selbstorganisierte QPe bisher nicht durchgeführt. Um die Auger-Rekombination in QPen genauer zu verstehen, können entsprechend z. B. unterschiedliche Größen von QPen, Formen und die Kopplung an finale Zustände im Leitungsband oder im Rückkontakt untersucht werden.

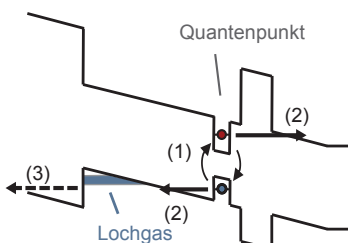


Abbildung 9.3: Bandstruktur der Probe mit den unterschiedlichen Prozessen, die zum Mitführen der Resonanz führen. (1) Resonante Anregung eines Elektron-Loch-Paares, (2) Ionisation des Exzitons, (3) Entleeren des Lochgases.

### 9.2.2 Stabilisierung der resonanten Fluoreszenz durch ein Lochgas

Es wurde eine rein-elektrische Rückkopplungsschleife gezeigt, die zur Stabilisierung der Resonanzen des QPs verwendet werden kann. In der resonanten Fluoreszenz des Exzitons wurden durch Ladungstrennung im elektrischen Feld ein zweidimensionales Lochgas gebildet, das in einer Rückkopplungsschleife die energetische Lage der QP-Resonanz beeinflusst. Diese Rückkopplungsschleife wirkt einer,

durch externe Störeinflüsse (Spin- und Ladungsrauschen) verursachten, energetischen Verschiebung der Resonanz entgegen. Ein Stabilisierungseffekt konnte in ersten Messungen mit einer Stabilisationsfrequenz von 10 Hz gezeigt werden.

*Ausblick:* Die Ladungs- und Spinfluktuationen liegen im Frequenzbereich bis 100 kHz, sodass die Stabilisationsfrequenz der Rückkopplungsschleife in zukünftigen Probenstrukturen erhöht werden muss, um die resonante Fluoreszenz optimal zu stabilisieren. Dies kann durch eine Verkleinerung der Mesa-Größe, die ein schnelleres Auf- und Abbauen des Lochgases erlaubt, erreicht werden. Zur Verbesserung der Stabilisierungseigenschaften können auch die Elektronen- und Lochtunnelraten über die Tunnelbarrieren, sowie die Exzitongenerationsrate über die Laserleistung optimiert werden.



# Eigene Publikationen

## Veröffentlicht

- A. Kurzmann, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Lorke and M. Geller, "Photoelectron generation and capture in the resonance fluorescence of a quantum dot", *Appl. Phys. Lett.* **108**, 263108 (2016).
- A. Kurzmann, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Lorke and M. Geller, "Auger recombination in self-assembled quantum dots: Quenching and broadening of the charged exciton transition", *Nano Lett.* **16** (5), 3367-3372 (2016).
- A. Kurzmann, B. Merkel, P. A. Labud, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Lorke and M. Geller, "Optical blocking of electron tunneling into a single self-assembled quantum dot", *Phys. Rev. Lett.* **117**, 017401 (2016).
- A. Kurzmann, A. Beckel, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Lorke and M. Geller, "The effect of charged quantum dots on the mobility of a two-dimensional electron gas: How important is the Coulomb scattering?", *J. Appl. Phys.* **117** (5), 054305 (2015).
- A. Beckel, A. Kurzmann, M. Geller, A. Ludwig, A. D. Wieck, J. König and A. Lorke, "Asymmetry of charge relaxation times in quantum dots: The influence of degeneracy", *Europhys. Lett.* **106** (4), 47002 (2014).

## Eingereicht

- A. Kurzmann, B. Merkel, B. Marquardt, A. Beckel, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Lorke and M. Geller, "Electron dynamics in transport and optics of self-assembled quantum dots", eingereicht bei *Phys. Stat. Sol. (b)*.
- B. Merkel, A. Kurzmann, J. H. Schulze, A. Strittmatter, M. Geller and A. Lorke, "A charge-driven feedback loop in the resonance fluorescence of a single quantum dot", arXiv:1606.03215 (2016).
- J. Sonntag, A. Kurzmann, M. Geller, F. Queisser, A. Lorke and R. Schützhold, "Giant magneto-photoelectric effect in suspended graphene", arXiv:1505.01762 (2015).



# Literatur

- Adler, F., Geiger, M., Bauknecht, A., Scholz, F., Schweizer, H., Pilkuhn, M. H., Ohnesorge, B. & Forchel, A., Optical transitions and carrier relaxation in self assembled InAs/GaAs quantum dots, *J. Appl. Phys.* **80**, 4019–4026 (1996).
- Arnold, C., Loo, V., Lemaître, A., Sagnes, I., Krebs, O., Voisin, P., Sennellart, P. & Lanco, L., Cavity-enhanced real-time monitoring of single-charge jumps at the microsecond time scale, *Phys. Rev. X* **4**, 021004 (2014).
- Astafiev, O., Zagoskin, A. M., Abdumalikov, A. A., Pashkin, Y. A., Yamamoto, T., Inomata, K., Nakamura, Y. & Tsai, J. S., Resonance Fluorescence of a Single Artificial Atom, *Science* **327**, 840–843 (2010).
- Bagrets, D. A. & Nazarov, Y. V., Full counting statistics of charge transfer in Coulomb blockade systems, *Phys. Rev. B* **67**, 085316 (2003).
- Bagrets, D. A., Utsumi, Y., Golubev, D. S. & Schön, G., Full Counting Statistics of Interacting Electrons, *Fortschr. Phys.* **54**, 425–456 (2006).
- Baier, M., Findeis, F., Zrenner, A., Bichler, M. & Abstreiter, G., Optical spectroscopy of charged excitons in single quantum dot photodiodes, *Phys. Rev. B* **64**, 195326 (2001).
- Bakker, M. P., Ruytenberg, T., Löffler, W., Barve, A., Coldren, L., van Exter, M. P. & Bouwmeester, D., Quantum dot nonlinearity through cavity-enhanced feedback with a charge memory, *Phys. Rev. B* **91**, 241305 (2015).
- Barthold, P., Hohls, F., Maire, N., Pierz, K. & Haug, R. J., Enhanced Shot Noise in Tunneling through a Stack of Coupled Quantum Dots, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 246804 (2006).
- Baskaran, A. & Smereka, P., Mechanisms of Stranski-Krastanov growth, *J. Appl. Phys.* **111**, 044321 (2012).
- Bayer, M., Ortner, G., Stern, O., Kuther, A., Gorbunov, A. A., Forchel, A., Hawrylak, P., Fafard, S., Hinzer, K., Reinecke, T. L., Walck, S. N., Reithmaier, J. P., Kloppe, F. & Schäfer, F., Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In (Ga) As/(Al) GaAs quantum dots, *Phys. Rev. B* **65**, 195315 (2002).
- Beattie, A. R. & Landsberg, P. T., Auger effect in semiconductors, *Proc. Roy. Soc. A* **249**, 16–29 (1959).

- Beckel, A., Ludwig, A., Wieck, A. D., Lorke, A. & Geller, M., Time-resolved transconductance spectroscopy on self-assembled quantum dots: Spectral evolution from single- into many-particle states, *Phys. Rev. B* **89**, 155430 (2014).
- Beckel, A., *Zeitaufgelöste Transportspektroskopie an gekoppelten 2D-oD-Systemen* Diss. (Universität Duisburg-Essen, 2014).
- Beckel, A., Kurzmann, A., Geller, M., Ludwig, A., Wieck, A. D., König, J. & Lorke, A., Asymmetry of charge relaxation times in quantum dots: The influence of degeneracy, *Europhys. Lett.* **106**, 47002 (2014).
- Beenakker, C. W. J., Theory of Coulomb-blockade oscillations in the conductance of a quantum dot, *Phys. Rev. B* **44**, 1646–1656 (1991).
- Beenakker, C. W. J. & Büttiker, M., Suppression of shot noise in metallic diffusive conductors, *Phys. Rev. B* **46**, 1889–1892 (1992).
- Belzig, W., Full counting statistics of super-Poissonian shot noise in multilevel quantum dots, *Phys. Rev. B* **71**, 161301 (2005).
- Bester, G., Nair, S. & Zunger, A., Pseudopotential calculation of the excitonic fine structure of million-atom self-assembled In  $1-x$  Ga  $x$  As/GaAs quantum dots, *Phys. Rev. B* **67**, 161306 (2003).
- Bimberg, D., *Semiconductor Nanostructures* (Springer, 2008).
- Bimberg, D., Grundmann, M. & Ledentsov, N. N., *Quantum Dot Heterostructures* (Wiley, 1998).
- Birk, H., De Jong, M. J. M. & Schönenberger, C., Shot-Noise Suppression in the Single-Electron Tunneling Regime, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1610–1613 (1995).
- Blanter, Y. M. & Büttiker, M., Shot noise in mesoscopic conductors, *Phys. Rep.* **336**, 1–166 (2000).
- Blanter, Y. M. & Büttiker, M., Transition from sub-Poissonian to super-Poissonian shot noise in resonant quantum wells, *Phys. Rev. B* **59**, 10217–10226 (1999).
- Bloch, I., *Licht-Atom Wechselwirkung im Zwei-Niveau System* (Johannes-Gutenberg-Universität, 2004).
- Chekhovich, E., Makhonin, M., Tartakovskii, A., Yacoby, A., Bluhm, H., Nowack, K. & Vandersypen, L., Nuclear spin effects in semiconductor quantum dots, *Nat. Mater.* **12**, 494–504 (2013).
- Cornish, E. A. & Fisher, R. A., Moments and Cumulants in the Specification of Distributions, *Revue de l'Inst. intern. de Stat.* **5**, 307–320 (1938).
- Dalgarno, P. A., Smith, J. M., McFarlane, J., Gerardot, B. D., Karrai, K., Badolato, A., Petroff, P. M. & Warburton, R. J., Coulomb interactions in single charged self-assembled quantum dots: Radiative lifetime and recombination energy, *Phys. Rev. B* **77**, 245311 (2008).
- Davies, J. H., *The physics of low-dimensional semiconductors: an introduction* (Cambridge university press, 1997).



- Dekel, E., Gershoni, D., Ehrenfreund, E., Spektor, D., Garcia, J. M. & Petroff, P. M., Multiexciton spectroscopy of a single self-assembled quantum dot, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4991 (1998).
- Drexler, H., Leonard, D., Hansen, W., Kotthaus, J. P. & Petroff, P. M., Spectroscopy of Quantum Levels in Charge-Tunable InGaAs Quantum Dots, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2252–2255 (1994).
- Ediger, M., Bester, G., Badolato, A., Petroff, P. M., Karrai, K., Zunger, A. & Warburton, R. J., Peculiar many-body effects revealed in the spectroscopy of highly charged quantum dots, *Nat. Phys.* **3**, 774–779 (2007).
- Elzerman, J. M., Hanson, R., Van Beveren, L. H. W., Witkamp, B., Vandersypen, L. M. K. & Kouwenhoven, L. P., Single-shot read-out of an individual electron spin in a quantum dot, *Nature* **430**, 431–435 (2004).
- Fock, V., Bemerkung zur Quantelung des harmonischen Oszillators im Magnetfeld, *Z. Phys.* **47**, 446–448 (1928).
- Fox, M., *Quantum Optics* (Oxford University Press, 2007).
- Gammon, D., Snow, E. S., Shanabrook, B. V., Katzer, D. S. & Park, D., Fine structure splitting in the optical spectra of single GaAs quantum dots, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3005 (1996).
- Garcia, J. M., Mankad, T., Holtz, P. O., Wellman, P. J. & Petroff, P. M., Electronic states tuning of InAs self-assembled quantum dots, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 3172–3174 (1998).
- Geller, M., Marquardt, B., Lorke, A., Reuter, D. & Wieck, A. D., A two-dimensional electron gas as a sensitive detector for time-resolved tunneling measurements on self-assembled quantum dots, *Nanoscale Res. Lett.* **5**, 829 (2010).
- Gerardot, B. D., Seidl, S., Dalgarno, P. A., Warburton, R. J., Kroner, M., Karrai, K., Badolato, A. & Petroff, P. M., Contrast in transmission spectroscopy of a single quantum dot, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 221106 (2007).
- Gerardot, B. D., Brunner, D., Dalgarno, P. A., Öhberg, P., Seidl, S., Kroner, M., Karrai, K., Stoltz, N. G., Petroff, P. M. & Warburton, R. J., Optical pumping of a single hole spin in a quantum dot, *Nature* **451**, 441–444 (2008).
- Gordon, E. I., A review of acoustooptical deflection and modulation devices, *Appl. Opt.* **5**, 1629–1639 (1966).
- Grundmann, M., Christen, J., Ledentsov, N. N., Böhrer, J., Bimberg, D., Ruvimov, S. S., Werner, P., Richter, U., Gösele, U., Heydenreich, J., Ustinov, V. M., Egorov, A. Y., Zhukov, A. E., Kop'ev, P. S. & Alferov, Z. I., Ultranarrow luminescence lines from single quantum dots, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4043 (1995).
- Gustavsson, S., Leturcq, R., Simović, B., Schleser, R., Studerus, P., Ihn, T., Ensslin, K., Driscoll, D. C. & Gossard, A. C., Counting statistics and super-Poissonian noise in a quantum dot: Time-resolved measurements of electron transport, *Phys. Rev. B* **74**, 195305 (2006).

- Gustavsson, S., Leturcq, R., Simovič, B., Schleser, R., Ihn, T., Studerus, P., Ensslin, K., Driscoll, D. C. & Gossard, A. C., Counting Statistics of Single Electron Transport in a Quantum Dot, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 076605 (2006).
- Gustavsson, S., Leturcq, R., Ihn, T., Ensslin, K., Reinwald, M. & Wegscheider, W., Measurements of higher-order noise correlations in a quantum dot with a finite bandwidth detector, *Phys. Rev. B* **75**, 075314 (2007).
- Gustavsson, S., Leturcq, R., Ihn, T., Ensslin, K., Driscoll, D. & Gossard, A., Noise measurements in quantum dots using charge detection techniques, *Physica E* **40**, 103–110 (2007).
- Gustavsson, S., Leturcq, R., Studer, M., Shorubalko, I., Ihn, T., Ensslin, K., Driscoll, D. C. & Gossard, A. C., Electron counting in quantum dots, *Surf. Sci. Rep.* **64**, 191–232 (2009).
- Hansom, J., Schulte, C. H., Le Gall, C., Matthiesen, C., Clarke, E., Hugues, M., Taylor, J. M. & Atatüre, M., Environment-assisted quantum control of a solid-state spin via coherent dark states, *Nat. Phys.* **10**, 725–730 (2014).
- Hansom, J., Schulte, C. H., Matthiesen, C., Stanley, M. J. & Atatüre, M., Frequency stabilization of the zero-phonon line of a quantum dot via phonon-assisted active feedback, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 172107 (2014).
- Hanson, R., van Beveren, L. H. W., Vink, I. T., Elzerman, J. M., Naber, W. J. M., Koppens, F. H. L., Kouwenhoven, L. P. & Vandersypen, L. M. K., Single-shot readout of electron spin states in a quantum dot using spin-dependent tunnel rates, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 196802 (2005).
- Hawrylak, P. & Wojs, A., Electronic structure and optical properties of self-assembled quantum dots, *Semicond. Sci. Technol.* **11**, 1516–1520 (1996).
- Held, R., Heinzl, T., Studerus, P., Ensslin, K. & Holland, M., Semiconductor quantum point contact fabricated by lithography with an atomic force microscope, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 2689–2691 (1997).
- Högele, A., Kroner, M., Latta, C., Claassen, M., Carusotto, I., Bulutay, C. & Imamoglu, A., Dynamic nuclear spin polarization in the resonant laser excitation of an InGaAs quantum dot, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 197403 (2012).
- Högele, A., Seidl, S., Kroner, M., Karrai, K., Warburton, R. J., Gerardot, B. D. & Petroff, P. M., Voltage-Controlled Optics of a Quantum Dot, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 217401 (2004).
- Houel, J., Kuhlmann, A. V., Greuter, L., Xue, F., Poggio, M., Gerardot, B. D., Dalgarno, P. A., Badolato, A., Petroff, P. M., Ludwig, A., Reuter, D., Wieck, A. D. & Warburton, R. J., Probing single-charge fluctuations at a GaAs/AlAs interface using laser spectroscopy on a nearby InGaAs quantum dot, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 107401 (2012).

- Inoshita, T. & Sakaki, H., Electron relaxation in a quantum dot: Significance of multiphonon processes, *Phys. Rev. B* **46**, 7260 (1992).
- Jang, Y. D., Badcock, T. J., Mowbray, D. J., Skolnick, M. S., Park, J., Lee, D., Liu, H. Y., Hopkinson, M., Hogg, R. A. & Andreev, A. D., Enhanced nonradiative Auger recombination in p-type modulation doped InAs/GaAs quantum dots, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 101903 (2008).
- Jha, P. P. & Guyot-Sionnest, P., Trion decay in colloidal quantum dots, *ACS Nano* **3**, 1011–1015 (2009).
- Jovanov, V., Kapfinger, S., Bichler, M., Abstreiter, G. & Finley, J. J., Direct observation of metastable hot trions in an individual quantum dot, *Phys. Rev. B* **84**, 235321 (2011).
- Joyce, B. A., Molecular beam epitaxy, *Rep. Prog. Phys.* **48**, 1637 (1985).
- Kambly, D., Flindt, C. & Büttiker, M., Factorial cumulants reveal interactions in counting statistics, *Phys. Rev. B* **83**, 075432 (2011).
- Kambly, D. & Flindt, C., Time-dependent factorial cumulants in interacting nano-scale systems, *J. Comput. Electron.* **12**, 331–342 (2013).
- Karrai, K. & Warburton, R. J., Optical transmission and reflection spectroscopy of single quantum dots, *Superlattices Microstruct.* **33**, 311–337 (2003).
- Kim, T.-J. & Holloway, P. H., Ohmic contacts to GaAs epitaxial layers, *Crit. Rev. Solid State Mater. Sci.* **22**, 239–273 (1997).
- Kittel, C., *Einführung in die Festkörperphysik* (Oldenbourg, 2002).
- Klimov, V. I., Mikhailovsky, A. A., McBranch, D. W., Leatherdale, C. A. & Bawendi, M. G., Quantization of multiparticle Auger rates in semiconductor quantum dots, *Science* **287**, 1011–1013 (2000).
- Kloeffel, C., Dalgarno, P. A., Urbaszek, B., Gerardot, B. D., Brunner, D., Petroff, P. M., Loss, D. & Warburton, R. J., Controlling the interaction of electron and nuclear spins in a tunnel-coupled quantum dot, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 046802 (2011).
- Kuhlmann, A. V., Houel, J., Brunner, D., Ludwig, A., Reuter, D., Wieck, A. D. & Warburton, R. J., A dark-field microscope for background-free detection of resonance fluorescence from single semiconductor quantum dots operating in a set-and-forget mode, *Rev. Sci. Instrum.* **84**, 073905 (2013).
- Kuhlmann, A. V., Houel, J., Ludwig, A., Greuter, L., Reuter, D., Wieck, A. D., Poggio, M. & Warburton, R. J., Charge noise and spin noise in a semiconductor quantum device, *Nat. Phys.* **9**, 570–575 (2013).
- Kuhn, A., Hennrich, M. & Rempe, G., Deterministic single-photon source for distributed quantum networking, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 067901 (2002).
- Kurzmann, A., Merkel, B., Labud, P. A., Ludwig, A., Wieck, A. D., Lorke, A. & Geller, M., Optical Blocking of Electron Tunneling into a Single Self-Assembled Quantum Dot, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 017401 (2016).

- Kurzmann, A., Ludwig, A., Wieck, A. D., Lorke, A. & Geller, M., Photoelectron generation and capture in the resonance fluorescence of a quantum dot, *Appl. Phys. Lett.* **108**, 263108 (2016).
- Kurzmann, A., *Transportspektroskopie an Halbleiter-Quantenstrukturen* Magisterarb. (Universität Duisburg-Essen, 2012).
- Kurzmann, A., Ludwig, A., Wieck, A. D., Lorke, A. & Geller, M., Auger recombination in self-assembled quantum dots: Quenching and broadening of the charged exciton transition, *Nano Lett.* **16**, 3367–3372 (2016).
- Langbein, W., Borri, P., Woggon, U., Stavarache, V., Reuter, D. & Wieck, A. D., Control of fine-structure splitting and biexciton binding in In x Ga 1-x As quantum dots by annealing, *Phys. Rev. B* **69**, 161301 (2004).
- Latta, C., Högele, A., Zhao, Y., Vamivakas, A. N., Maletinsky, P., Kroner, M., Dreiser, J., Carusotto, I., Badolato, A., Schuh, D., Wegscheider, W., Atatüre, M. & Imamoglu, A., Confluence of resonant laser excitation and bidirectional quantum-dot nuclear-spin polarization, *Nat. Phys.* **5**, 758–763 (2009).
- Leonard, D., Pond, K. & Petroff, P. M., Critical layer thickness for self-assembled InAs islands on GaAs, *Phys. Rev. B* **50**, 11687–11692 (1994).
- Li, S.-S. & Xia, J.-B., Quantum-confined Stark effects of InAs/GaAs self-assembled quantum dot, *J. Appl. Phys.* **88**, 7171–7174 (2000).
- Loudon, R., *The Quantum Theory of Light* (Oxford University Press, 2010).
- Lu, C.-Y., Zhao, Y., Vamivakas, A. N., Matthiesen, C., Fält, S., Badolato, A. & Atatüre, M., Direct measurement of spin dynamics in InAs/GaAs quantum dots using time-resolved resonance fluorescence, *Phys. Rev. B* **81**, 035332 (2010).
- Lüscher, S., Fuhrer, A., Held, R., Heinzl, T., Ensslin, K., Bichler, M. & Wegscheider, W., Quantum wires and quantum dots defined by lithography with an atomic force microscope, *Microel. J.* **33**, 319–321 (2002).
- Luyken, R. J., Lorke, A., Govorov, A. O., Kotthaus, J. P., Medeiros-Ribeiro, G. & Petroff, P. M., The dynamics of tunneling into self-assembled InAs dots, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2486–2488 (1999).
- Ma, Z., Pierz, K., Keyser, U. F. & Haug, R. J., Photoluminescence of self-assembled InAs/AlAs quantum dots as a function of density, *Physica E* **17**, 117–119 (2003).
- Mansfield, S. M. & Kino, G. S., Solid immersion microscope, *App. Phys. Lett.* **57**, 2615–2616 (1990).
- Marquardt, B., Beckel, A., Lorke, A., Wieck, A. D., Reuter, D. & Geller, M., The influence of charged InAs quantum dots on the conductance of a two-dimensional electron gas: Mobility vs. carrier concentration, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 223510 (2011).

- Marquardt, B., Geller, M., Baxevanis, B., Pfannkuche, D., Wieck, A. D., Reuter, D. & Lorke, A., Transport spectroscopy of non-equilibrium many-particle spin states in self-assembled quantum dots, *Nat. Commun.* **2**, 209 (2011).
- Márquez, J., Geelhaar, L. & Jacobi, K., Atomically resolved structure of InAs quantum dots, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2309–2311 (2001).
- Marzin, J. Y., Gérard, J. M., Izraël, A., Barrier, D. & Bastard, G., Photoluminescence of single InAs quantum dots obtained by self-organized growth on GaAs, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 716–719 (1994).
- Matthiesen, C., Stanley, M. J., Hugues, M., Clarke, E. & Atatüre, M., Full counting statistics of quantum dot resonance fluorescence, *Sci. Rep.* **4**, 4911 (2014).
- Matthiesen, C., Geller, M., Schulte, C. H. H., Le Gall, C., Hansom, J., Li, Z., Hugues, M., Clarke, E. & Atatüre, M., Phase-locked indistinguishable photons with synthesized waveforms from a solid-state source, *Nat. Commun.* **4**, 1600 (2013).
- Matthiesen, C., Vamivakas, A. N. & Atatüre, M., Subnatural Line-width Single Photons from a Quantum Dot, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 093602 (2012).
- Medeiros-Ribeiro, G., Leonard, D. & Petroff, P. M., Electron and hole energy levels in InAs self-assembled quantum dots, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 1767–1769 (1995).
- Meitner, L., Über die  $\beta$ -Strahl-Spektren und ihren Zusammenhang mit der  $\gamma$ -Strahlung, *Z. Phys.* **11**, 35–54 (1922).
- Merkel, B., Kurzmann, A., Merkel, B., Ludwig, A., Wieck, A. D., Lorke, A. & Geller, M., A charge-driven feedback loop in the resonance fluorescence of a single quantum dot, *arXiv:1606.03215* (2016).
- Merkel, B., *Optische Untersuchung dynamischer Prozesse an einzelnen Quantenpunkten* Masterarbeit. (Universität Duisburg-Essen, 2015).
- Moison, J., Houzay, F., Barthe, F., Leprince, L., Andre, E. & Vatel, O., Self-organized growth of regular nanometer-scale InAs dots on GaAs, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 196–198 (1994).
- Monniello, L., Tonin, C., Hostein, R., Lemaitre, A., Martinez, A., Violot, V. & Grousson, R., Excitation-Induced Dephasing in a Resonantly Driven InAs/GaAs Quantum Dot, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 026403 (2013).
- Muller, A., Flagg, E. B., Bianucci, P., Wang, X. Y., Deppe, D. G., Ma, W., Zhang, J., Salamo, G. J., Xiao, M. & Shih, C. K., Resonance Fluorescence from a Coherently Driven Semiconductor Quantum Dot in a Cavity, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 187402 (2007).
- Naaman, O. & Aumentado, J., Poisson transition rates from time-domain measurements with a finite bandwidth, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 100201 (2006).
- Nguyen, H.-S., Sallen, G., Voisin, C., Roussignol, P., Diederichs, C. & Cassabois, G., Optically gated resonant emission of single quantum dots, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 057401 (2012).

- Nguyen, H. S., Sallen, G., Abbarchi, M., Ferreira, R., Voisin, C., Rousignol, P., Cassaboïs, G. & Diederichs, C., Photoneutralization and slow capture of carriers in quantum dots probed by resonant excitation spectroscopy, *Phys. Rev. B* **87**, 115305 (2013).
- Nolting, W., *Grundkurs Theoretische Physik 5/1* (Springer, 2009).
- Nolting, W., *Grundkurs Theoretische Physik 5/2* (Springer, 2015).
- Park, Y.-S., Bae, W. K., Pietryga, J. M. & Klimov, V. I., Auger recombination of biexcitons and negative and positive trions in individual quantum dots, *ACS Nano* **8**, 7288–7296 (2014).
- Petroff, P. M., Lorke, A. & Imamoglu, A., Epitaxially self-assembled quantum dots, *Phys. Today* **54**, 46–52 (2001).
- Pfannkuche, D., Gudmundsson, V. & Maksym, P. A., Comparison of a Hartree, a Hartree-Fock, and an exact treatment of quantum-dot helium, *Phys. Rev. B* **47**, 2244–2250 (1993).
- Pietryga, J. M., Zhuravlev, K. K., Whitehead, M., Klimov, V. I. & Schaller, R. D., Evidence for barrierless Auger recombination in PbSe nanocrystals: a pressure-dependent study of transient optical absorption, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 217401 (2008).
- Prechtel, J. H., Kuhlmann, A. V., Houel, J., Greuter, L., Ludwig, A., Reuter, D., Wieck, A. D. & Warburton, R. J., Frequency-stabilized source of single photons from a solid-state qubit, *Phys. Rev. X* **3**, 041006 (2013).
- Press, D., Göttinger, S., Reitzenstein, S., Hofmann, C., Löffler, A., Kamp, M., Forchel, A. & Yamamoto, Y., Photon antibunching from a single quantum-dot-microcavity system in the strong coupling regime, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 117402 (2007).
- Robel, I., Gresback, R., Kortshagen, U., Schaller, R. D. & Klimov, V. I., Universal Size-Dependent Trend in Auger Recombination in Direct-Gap and Indirect-Gap Semiconductor Nanocrystals, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 177404 (2009).
- Saleh, B. E. A. & Teich, M. C., *Grundlagen der Photonik* (2008).
- Santori, C., Fattal, D., Vuckovic, J., Solomon, G. S. & Yamamoto, Y., Indistinguishable photons from a single-photon device, *Nature* **419**, 594–597 (2002).
- Schulte, C. H. H., Hansom, J., Jones, A. E., Matthiesen, C., Le Gall, C. & Atatüre, M., Quadrature squeezed photons from a two-level system, *Nature* **525**, 222–225 (2015).
- Seguin, R., Schliwa, A., Rodt, S., Pötschke, K., Pohl, U. W. & Bimberg, D., Size-dependent fine-structure splitting in self-organized InAs/GaAs quantum dots, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 257402 (2005).
- Seidl, S., Kroner, M., Dalgarno, P. A., Högele, A., Smith, J. M., Ediger, M., Gerardot, B. D., Garcia, J. M., Petroff, P. M., Karrai, K. & Warburton, R. J., Absorption and photoluminescence spectroscopy on a single self-assembled charge-tunable quantum dot, *Phys. Rev. B* **72**, 195339 (2005).

- Siyushev, P., Pinto, H., Vörös, M., Gali, A., Jelezko, F. & Wrachtrup, J., Optically controlled switching of the charge state of a single nitrogen-vacancy center in diamond at cryogenic temperatures, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 167402 (2013).
- Snider, G., *1D Poisson/Schrödinger: A Band Diagram Calculator* University of Notre Dame, <<http://www.nd.edu/gsnider>>.
- Stegmann, P., Sothmann, B., Hucht, A. & König, J., Detection of interactions via generalized factorial cumulants in systems in and out of equilibrium, *Phys. Rev. B* **92**, 155413 (2015).
- Stier, O., Grundmann, M. & Bimberg, D., Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band k·p theory, *Phys. Rev. B* **59**, 5688 (1999).
- Stievater, T., Li, X., Steel, D. G., Gammon, D., Katzer, D. S., Park, D., Piermarocchi, C. & Sham, L. J., Rabi oscillations of excitons in single quantum dots, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 133603 (2001).
- Stock, E., Warming, T., Ostapenko, I., Rodt, S., Schliwa, A., Töfflinger, J. A., Lochmann, A., Toropov, A. I., Moshchenko, S. A., Dmitriev, D. V., Haisler, V. A. & Bimberg, D., Single-photon emission from InGaAs quantum dots grown on (111) GaAs, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 093112 (2010).
- Strittmatter, A. *et al.*, Site-controlled quantum dot growth on buried oxide stressor layers, *Phys. Stat. Sol. (a)* **209**, 2411–2420 (2012).
- Vaxenburg, R., Rodina, A., Shabaev, A., Lifshitz, E. & Efros, A. L., Nonradiative Auger Recombination in Semiconductor Nanocrystals, *Nano Lett.* **15**, 2092–2098 (2015).
- Warburton, R. J., Miller, B. T., Dürr, C. S., Bödefeld, C., Karrai, K. & Kotthaus, J. P., Coulomb interactions in small charge-tunable quantum dots: A simple model, *Phys. Rev. B* **58**, 16 221 (1998).
- Warburton, R. J., Schulhauser, C., Haft, D., Schäflein, C., Karrai, K., Garcia, J. M., Schoenfeld, W. & Petroff, P. M., Giant permanent dipole moments of excitons in semiconductor nanostructures, *Phys. Rev. B* **65**, 113303 (2002).
- Warburton, R. J., Single spins in self-assembled quantum dots, *Nat. Mater.* **12**, 483–493 (2013).
- Warburton, R. J., Schäflein, C., Haft, D., Bickel, F., Lorke, A., Karrai, K., Garcia, J. M., Schoenfeld, W. & Petroff, P. M., Optical emission from a charge-tunable quantum ring, *Nature* **405**, 926–929 (2000).
- Weis, J., Haug, R. J., Klitzing, K. V. & Ploog, K., Competing channels in single-electron tunneling through a quantum dot, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 4019 (1993).
- Wood, D. L. & Nassau, K., Refractive index of cubic zirconia stabilized with yttria, *Appl. Opt.* **21**, 2978–2981 (1982).
- Wüst, G., Munsch, M., Maier, F., Kuhlmann, A. V., Ludwig, A., Wieck, A. D., Loss, D., Poggio, M. & Warburton, R. J., Role of the electron spin in determining the coherence of the nuclear spins in a quantum dot, *Nat. Nanotechnol.* **11**, 885–889 (2016).

- Zrenner, A., Beham, E., Stufler, S., Findeis, F., Bichler, M. & Abstreiter, G., Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode, *Nature* **418**, 612–614 (2002).
- Zwiller, V. & Björk, G., Improved light extraction from emitters in high refractive index materials using solid immersion lenses, *J. Appl. Phys.* **92**, 660–665 (2002).
- Zwiller, V., Aichele, T. & Benson, O., Quantum optics with single quantum dot devices, *New J. Phys.* **6**, 96 (2004).



# *Danke!*

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

*“Man liebt das, wofür man sich müht, und man müht sich für das, was man liebt.“ (Erich Fromm)*

Prof. Dr. Axel Lorke danke ich für seine Freude an der Physik und der Forschung und seine kreativen Ideen, die oft die Lösung für Probleme waren. Ich danke dir, dass ich ein Teil deiner Arbeitsgruppe sein durfte.

*“Gut ist nicht gut genug, wenn Besseres erwartet wurde.“ (Thomas Fuller)*

Paul Geller danke ich für seine Hilfe, Zeit und Motivation beim Aufbau des Labors, ohne ihn wäre der Aufbau nicht und vor allem nicht so schnell möglich gewesen. Außerdem danke ich ihm für die Motivation und Hilfe, wenn etwas nicht funktioniert hat, Diskussionen über Messungen und Messergebnisse, Ideen für Messungen, Korrekturen meiner etwa(s)... Danke für Alles!

*“Ich habe keine Lösung, aber ich bewundere das Problem.“ (Ashleigh Brilliant)*

Ich danke den Master- und Bachelorstudenten, deren Probleme ich immer wieder bewundern durfte, für ihre schönen Abschlussarbeiten, die ich teilweise auch für diese Arbeit verwenden durfte; vor allem danke ich Benjamin Merkel, Amran Al-Ashouri, Jens Sonntag und Jens Kerski.

Benjamin Merkel danke ich besonders für einige Raten-Gleichungen zu den Tunnelprozessen, die Geduld bei der Prozessierung der Mesa-Strukturen und die erfolgreichen Messungen und Rechnungen zur Rückkopplungsschleife im Rahmen seiner Masterarbeit. Hier danke ich auch Amran Al-Ashouri, der genau so viel Geduld für die Prozessierung der Proben und die ersten Stabilisationsmessungen aufbringen musste. Jens Kerski danke ich für die Hilfe bei der Auswertung der vielen Messdaten zum Telegraphenrauschen.

*“Es genügt nicht, zum Fluss zu kommen mit dem Wunsch, Fische zu fangen. Man muss auch ein Netz mitbringen.” (Konfuzius)*

Prof. Dr. Andreas D. Wieck, Arne Ludwig und Patrick Labud danke ich für die Herstellung der Proben ohne die diese Arbeit nicht möglich gewesen wäre. Hier danke ich besonders Arne Ludwig, der immer schnell für einen Nachschub der Proben gesorgt hat. Auch Prof. Dr. André Strittmatter und Jan-Hindrik Schulze danke ich für die Herstellung der positionierten Quantenpunktproben.

*“Es gibt nichts Praktischeres als eine gute Theorie.” (Hennes Grodeck)*

Für Diskussionen über das Einzelelektronentunneln und Anregungen für zukünftige Messungen danke ich Prof. Dr. Jürgen König und Philipp Stegmann.

*“Das Leben ist zu kurz für schlechten Kaffee.”*

Bei Mathias Bartsch möchte ich mich für die vielen “Kleinigkeiten” bei denen er mir in den letzten Jahren geholfen hat und die Wartung der Kaffeemaschine bedanken. Für genau so viele Kleinigkeiten und den Tipp zum Auger-Prozess danke ich Günther Prinz.

Auch dem Rest der Arbeitsgruppe danke ich für die gute Atmosphäre, einige Kicker-Duelle, Filmeabende, Kletterabende, Kaffeestunden, Konferenzen... Hier danke ich vor allem: Paul Geller, Jens Sonntag, Daniel Braam, Kevin Eltrudis und Amran Al-Ashouri.

*“Last but not least.”*

Zum Schluss möchte ich meiner “Bonus“-Familie und meiner Familie für ihre Unterstützung während des Studiums und der Doktorzeit danken.

# *Erklärung*

Ich versichere, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig und nur mit den angegeben Hilfsmitteln verfasst habe, sowie alle wörtlich oder inhaltlich übernommenen Stellen als solche kenntlich gemacht habe.

Mit der Vorlage dieser Arbeit strebe ich den Grad eines Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.) an.

Ich habe weder diese noch eine andere Arbeit in einem weiteren Promotionsverfahren eingereicht.